

BEST AVAILABLE COPY

PCT/JP 2004/015297

08.10.2004

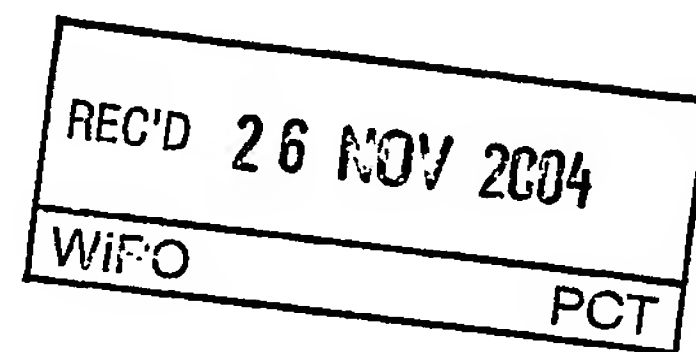
日本国特許庁
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出願年月日
Date of Application: 2003年10月17日

出願番号
Application Number: 特願2003-358004
[ST. 10/C]: [JP 2003-358004]



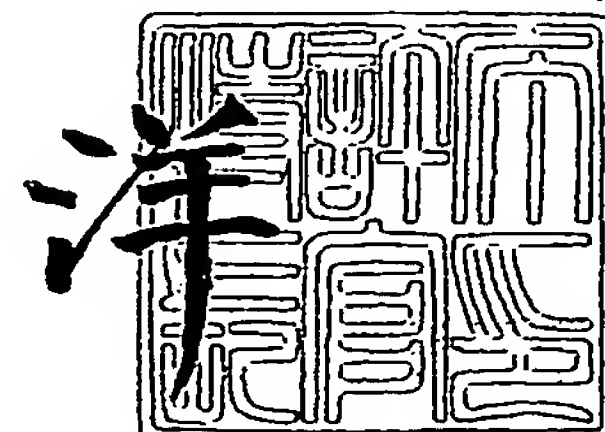
出願人
Applicant(s): 新日本理化学株式会社

PRIORITY DOCUMENT
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN
COMPLIANCE WITH
RULE 17.1(a) OR (b)

2004年11月12日

特許庁長官
Commissioner,
Japan Patent Office

小川



出証番号 出証特2004-3102356

【書類名】 特許願
【整理番号】 5772003JP
【提出日】 平成15年10月17日
【あて先】 特許庁長官殿
【国際特許分類】 C07C233/06
C08L 23/10

【発明者】
【住所又は居所】 京都府京都市伏見区葭島矢倉町 1 3 番地 新日本理化株式会社内
【氏名】 北川 宏

【発明者】
【住所又は居所】 京都府京都市伏見区葭島矢倉町 1 3 番地 新日本理化株式会社内
【氏名】 石川 雅英

【発明者】
【住所又は居所】 京都府京都市伏見区葭島矢倉町 1 3 番地 新日本理化株式会社内
【氏名】 上岡 千明

【発明者】
【住所又は居所】 京都府京都市伏見区葭島矢倉町 1 3 番地 新日本理化株式会社内
【氏名】 仁賀 助宏

【発明者】
【住所又は居所】 京都府京都市伏見区葭島矢倉町 1 3 番地 新日本理化株式会社内
【氏名】 内山 陽平

【特許出願人】
【識別番号】 000191250
【氏名又は名称】 新日本理化株式会社

【代理人】
【識別番号】 100065215
【弁理士】
【氏名又は名称】 三枝 英二
【電話番号】 06-6203-0941

【選任した代理人】
【識別番号】 100076510
【弁理士】
【氏名又は名称】 掛樋 悠路

【選任した代理人】
【識別番号】 100086427
【弁理士】
【氏名又は名称】 小原 健志

【選任した代理人】
【識別番号】 100099988
【弁理士】
【氏名又は名称】 斎藤 健治

【選任した代理人】
【識別番号】 100105821
【弁理士】
【氏名又は名称】 藤井 淳

【選任した代理人】
【識別番号】 100099911
【弁理士】
【氏名又は名称】 関 仁士

【選任した代理人】
【識別番号】 100108084
【弁理士】
【氏名又は名称】 中野 睦子
【手数料の表示】
【予納台帳番号】 001616
【納付金額】 21,000円
【提出物件の目録】
【物件名】 特許請求の範囲 1
【物件名】 明細書 1
【物件名】 要約書 1
【包括委任状番号】 9704722

【書類名】 特許請求の範囲

【請求項 1】

一般式 (1)

【化 1】

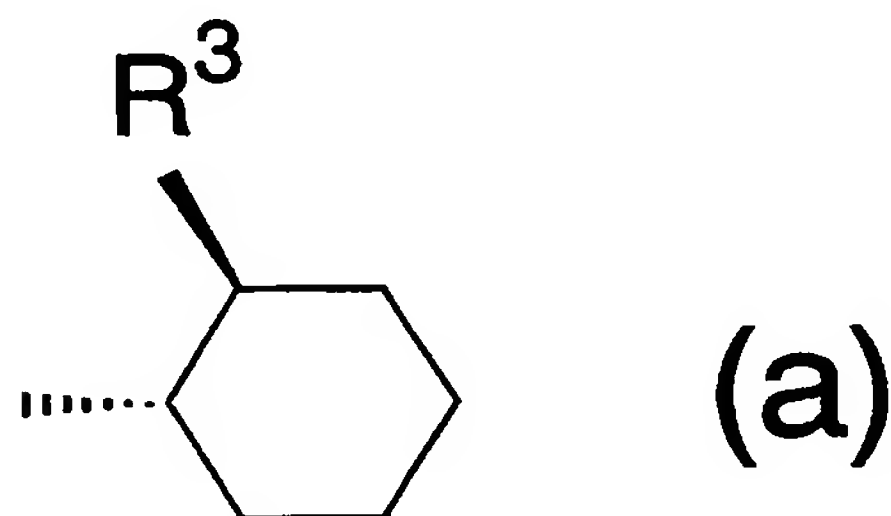


[式中、

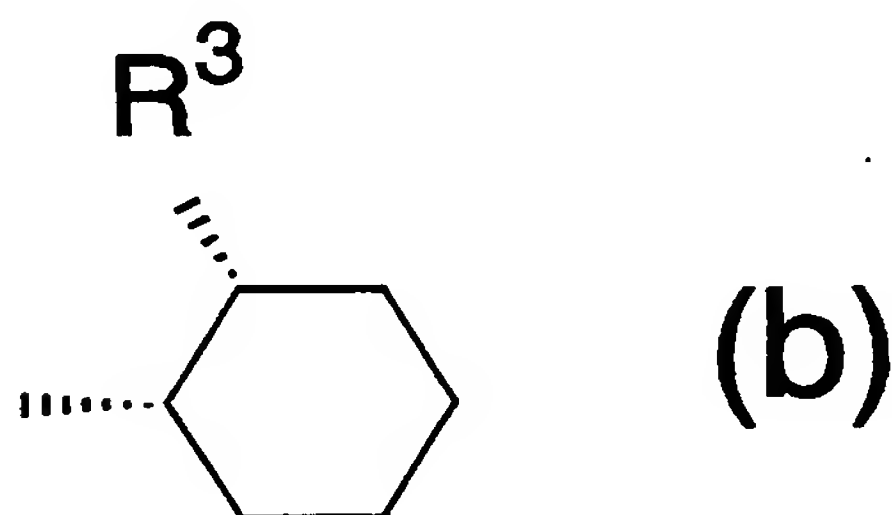
a は、2 ～ 6 の整数を表す。

R¹ は、炭素数 2 ～ 30 の飽和若しくは不飽和脂肪族ポリカルボン酸残基を表し、該脂肪族ポリカルボン酸残基は 2 ～ 6 個の基である。2 ～ 6 個の R² 基は、同一又は異なって、一般式 (a)

【化 2】

(式中、R³ は炭素数 1 ～ 10 の直鎖状又は分枝状のアルキル基を表す。) で表されるトランス-2-アルキルシクロヘキシルアミン残基、又は、一般式 (b)

【化 3】

(式中、R³ は炭素数 1 ～ 10 の直鎖状又は分枝状のアルキル基を表す。) で表されるシス-2-アルキルシクロヘキシルアミン残基を表す。]

で表されるアミド系化合物又は該アミド化合物の少なくとも 2 種の混合物であって、

下記数式 (E) で求められる上記式 (a) で表されるトランス-2-アルキルシクロヘキシルアミン残基の含量 (C_{trans}) が 70 ～ 100 %であることを特徴とする化合物又は混合物:

$$C_{trans} (\%) = [A_{trans} / (A_{trans} + A_{cis})] \times 100 \quad (E)$$

[式中、

A_{trans} は、上記一般式 (a) で表されるトランス-2-アルキルシクロヘキシルアミン残基の FT-IR 法で測定される N-H 伸縮振動吸収帯の吸光度を示し、A_{cis} は、上記一般式 (b) で表されるシス-2-アルキルシクロヘキシルアミン残基の FT-IR 法で測定される N-H 伸縮振動吸収帯の吸光度を示す。]

【請求項 2】

数式 (E) で求められる上記式 (a) で表されるトランス-2-アルキルシクロヘキシルアミン残基の含量が 75 ～ 100 %である請求項 1 に記載の化合物又は混合物。

【請求項 3】

R^3 が、炭素数1～6の直鎖状又は分枝状のアルキル基である請求項1又は2に記載の化合物又は混合物。

【請求項4】

R^3 が、メチル基である請求項1～3のいずれかに記載の化合物又は混合物。

【請求項5】

R^3 がメチル基であり、2-メチルシクロヘキシルアミノ基の立体構造が全てトランスである請求項1～4のいずれかに記載の化合物又は混合物。

【請求項6】

R^1 が、1, 2, 3, 4-ブタンテトラカルボン酸残基又は1, 2, 3-プロパントリカルボン酸残基である請求項1～5のいずれかに記載の化合物又は混合物。

【請求項7】

R^1 が1, 2, 3, 4-ブタンテトラカルボン酸残基であって、数式(E)で求められる上記式(a)で表されるトランス-2-アルキルシクロヘキシルアミン残基の含量が90～100%である請求項1～5のいずれかに記載の化合物又は混合物。

【請求項8】

R^1 が1, 2, 3-プロパントリカルボン酸残基であって、数式(E)で求められる上記式(a)で表されるトランス-2-アルキルシクロヘキシルアミン残基の含量が90～100%である請求項1～6のいずれかに記載の化合物又は混合物。

【請求項9】

一般式(1)

【化4】



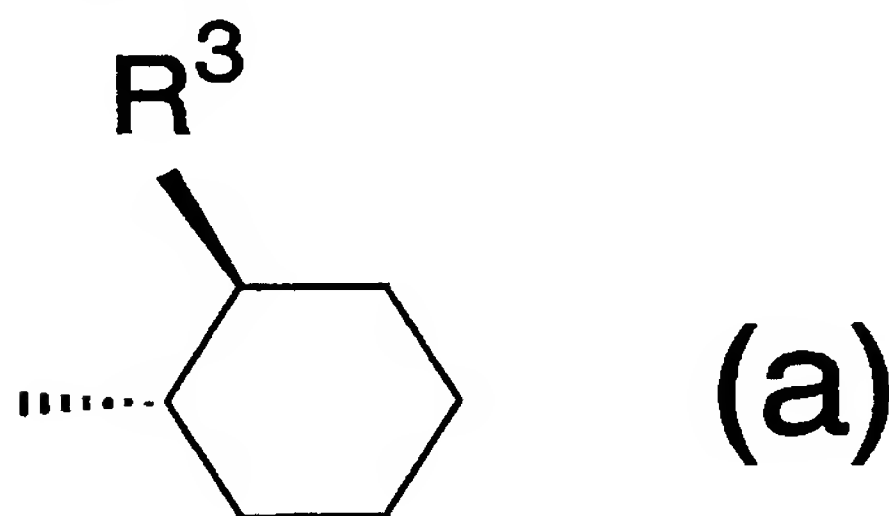
[式中、

a は、2～6の整数を表す。

R^1 は、炭素数2～30の飽和若しくは不飽和脂肪族ポリカルボン酸残基を表し、該脂肪族ポリカルボン酸残基は2～6価の基である。

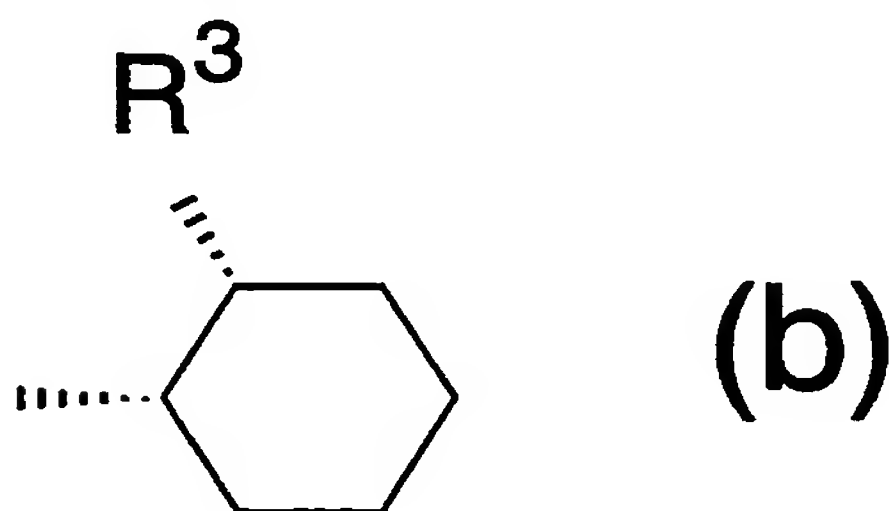
2～6個の R^2 基は、同一又は異なって、一般式(a)

【化5】



(式中、 R^3 は炭素数1～10の直鎖状又は分枝状のアルキル基を表す。)で表されるトランス-2-アルキルシクロヘキシルアミン残基、又は、一般式(b)

【化6】



(式中、 R^3 は炭素数1～10の直鎖状又は分枝状のアルキル基を表す。)で表されるシス-2-アルキルシクロヘキシルアミン残基を表す。]

で表されるアミド系化合物の少なくとも1種を必須成分として含むポリオレフィン樹脂用造核剤であって、

下記数式(E)で求められる上記一般式(a)で表されるトランス-2-アルキルシクロヘキシルアミン残基の含量(Ctrans)が70～100%であることを特徴とするポリオレフィン樹脂用造核剤:

$$C_{trans}(\%) = [A_{trans} / (A_{trans} + A_{cis})] \times 100 \quad (E)$$

[式中、

A_{trans} は、上記一般式(a)で表されるトランス-2-アルキルシクロヘキシルアミン残基のFT-IR法で測定されるN-H伸縮振動吸収帯の吸光度を示し、

A_{cis} は、上記一般式(b)で表されるシス-2-アルキルシクロヘキシルアミン残基のFT-IR法で測定されるN-H伸縮振動吸収帯の吸光度を示す。]

【請求項10】

数式(E)で求められる上記一般式(a)で表されるトランス-2-アルキルシクロヘキシルアミン残基の含量が75～100%である請求項9に記載のポリオレフィン樹脂用造核剤。

【請求項11】

R^3 が、炭素数1～6の直鎖状又は分枝状のアルキル基である請求項9又は10に記載のポリオレフィン樹脂用造核剤。

【請求項12】

R^3 が、メチル基である請求項9～11のいずれかに記載のポリオレフィン樹脂用造核剤。

【請求項13】

R^3 がメチル基であり、2-メチルシクロヘキシルアミノ基の立体構造が全てトランスである請求項9～12のいずれかに記載のポリオレフィン樹脂用造核剤。

【請求項14】

R^1 が、1, 2, 3, 4-ブタンテトラカルボン酸残基又は1, 2, 3-プロパントリカルボン酸残基である請求項9～13のいずれかに記載のポリオレフィン樹脂用造核剤。

【請求項15】

R^1 が1, 2, 3, 4-ブタンテトラカルボン酸残基であって、数式(E)で求められる上記一般式(a)で表されるトランス-2-アルキルシクロヘキシルアミン残基の含量が90～100%である請求項9～14のいずれかに記載のポリオレフィン樹脂用造核剤。

【請求項16】

R^1 が1, 2, 3-プロパントリカルボン酸残基であって、数式(E)で求められる上記一般式(a)で表されるトランス-2-アルキルシクロヘキシルアミン残基の含量が90～100%である請求項9～14のいずれかに記載のポリオレフィン樹脂用造核剤。

【請求項17】

ポリオレフィン樹脂及び請求項1～8のいずれかに記載の化合物又は混合物を含有するポリオレフィン樹脂組成物。

【請求項18】

ポリオレフィン樹脂100重量部に対し、請求項1～8のいずれかに記載の化合物又は混合物を0.01～10重量部含有することを特徴とする請求項17に記載のポリオレフィン樹脂組成物。

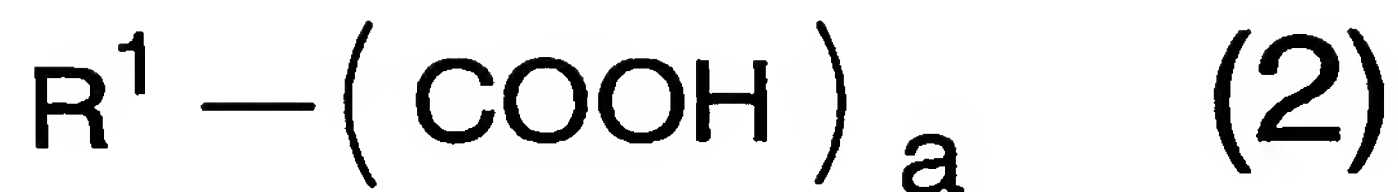
【請求項19】

請求項17又は18に記載のポリオレフィン樹脂組成物を成形することにより得ることができるポリオレフィン樹脂成形体。

【請求項20】

請求項1に記載の化合物又は混合物の製造法であって、一般式(2)

【化7】

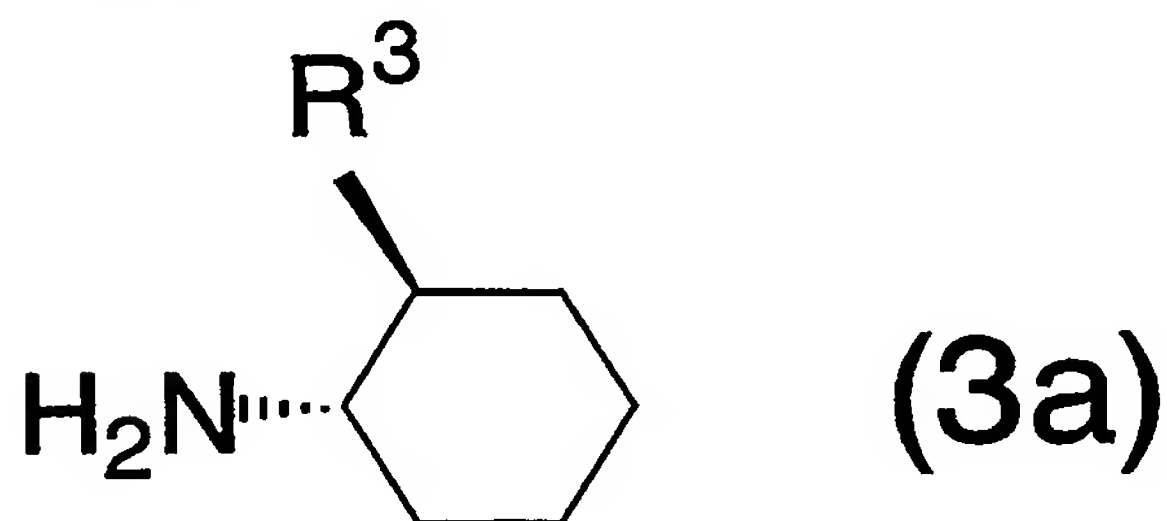


[式中、 R^1 は炭素数2～30の飽和若しくは不飽和脂肪族ポリカルボン酸残基を表す。
 a は2～6の整数を表す。]

で表されるポリカルボン酸又はその反応性誘導体と

(i) 一般式(3a)

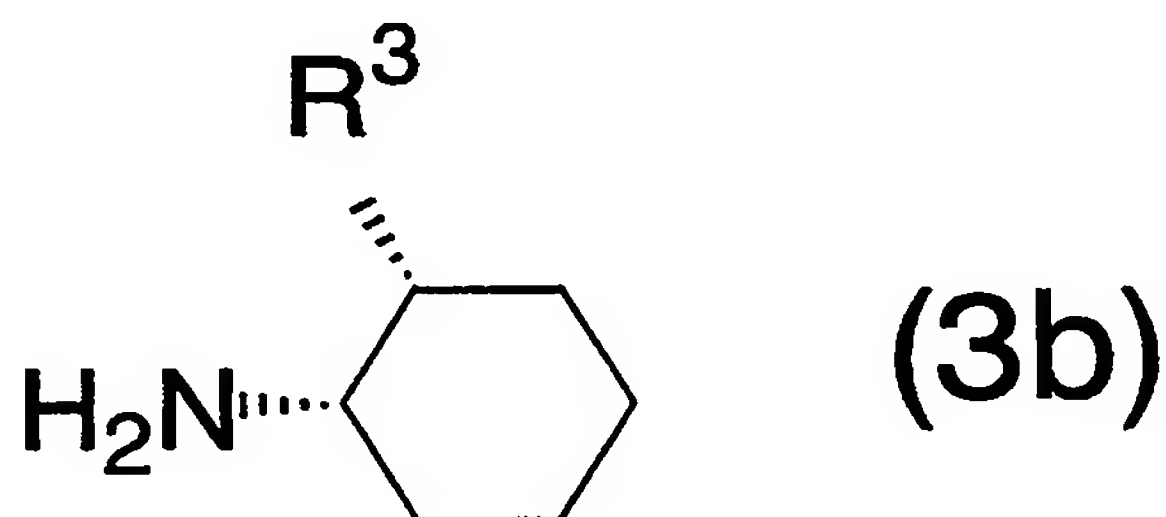
【化8】



[式中、 R^3 は炭素数1～10の直鎖状又は分枝状のアルキル基を表す。] で表されるトランス-2-アルキルシクロヘキシルアミン、又は、

(ii) 上記一般式(3a)で表されるトランス-2-アルキルシクロヘキシルアミンと一般式(3b)

【化9】



[式中、 R^3 は炭素数1～10の直鎖状又は分枝状のアルキル基を表す。] で表されるシス-2-アルキルシクロヘキシルアミンとからなり、ガスクロマトグラフィー (GLC) により測定した一般式(3a)で表されるトランス-2-アルキルシクロヘキシルアミン含量が70%以上である混合物

とをアミド化反応させることを特徴とする製造法。

【書類名】明細書

【発明の名称】アミド系化合物、その製造法、ポリオレフィン樹脂用造核剤、該造核剤を含むポリオレフィン樹脂組成物及びその成形体

【技術分野】

【0001】

本発明は、アミド系化合物、その製造法、該アミド系化合物を含有するポリオレフィン樹脂用造核剤、該造核剤を含むポリオレフィン樹脂組成物及びその成形体に関する。

【背景技術】

【0002】

ポリオレフィン樹脂は、成形性、機械特性、電気特性等が優れているために、フィルム成形、シート成形、ブロー成形、射出成形等の素材として、様々な分野に应用されている。

【0003】

しかし、当該樹脂は、一般的には優れた物性を有しているものの、透明性、結晶性及び剛性が低いという問題点があり、ある種の用途によっては、その樹脂本来の優れた性能が十分に引き出せないために、その適用が制限されたものとなっているのが現状である。

【0004】

従来より、ポリオレフィン樹脂の透明性、結晶性及び剛性を改善するために、アミド系化合物を活用する技術が提案されている（特許文献1～3）。しかしながら、これらアミド系化合物は、ポリオレフィン樹脂に対する透明性や機械的強度（特に、剛性）の付与効果は良好であるが、更に優れた物性をポリオレフィン樹脂組成物に与え得る造核剤の開発が望まれている。

【0005】

特に、特許文献2に記載のアミド系造核剤は、優れた透明性、結晶性及び剛性をポリオレフィン樹脂組成物に付与するものであるが、当該アミド系造核剤はそれ自体の熱安定性の点で必ずしも満足し得るものではなく、更に、熱安定性の向上が求められている。

【特許文献1】日本特許第3401868号公報

【特許文献2】特開平7-242610号公報

【特許文献3】WO00/52089号公報

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0006】

本発明は、上記問題点を解消し、透明性、結晶性（耐熱性）及び剛性がより向上した成形体を製造できると共に、それ自体の熱安定性も向上したアミド系化合物、その製造法、該アミド系化合物を必須成分として含むポリオレフィン樹脂用造核剤、該造核剤を含むポリオレフィン樹脂組成物及びその成形体を提供することを目的とする。

【課題を解決するための手段】

【0007】

本発明者らは、かかる現状に鑑み、上記課題を解決すべく鋭意検討を行った結果、次の知見を得た。

【0008】

(1)前記特許文献2に記載のアミド系造核剤については、原料として市販の2-メチルシクロヘキシルアミンを使用したものである。これまでに試薬として又は工業製品として市販されている2-メチルシクロヘキシルアミンは、トランス体：シス体＝約68：32（GLC組成％）の混合物であり、これ以外の組成のものは販売されていない。かかる原料を使用して得られる特許文献2に記載のアミド系造核剤、例えば、1, 2, 3, 4-ブタンテトラカルボン酸テトラキス（2-メチルシクロヘキシルアミド）、1, 2, 3-プロパントリカルボン酸トリス（2-メチルシクロヘキシルアミド）等においても、対応するアミド構造がトランス配置を有する部分と対応するアミド構造がシス配置を有する部分との混合体となっている。

【0009】

(2)このアミド化合物のトランス配置部分の量：シス配置部分の量の割合は、F T-I R法で測定されるN-H伸縮振動吸収帯の吸光度比から求めたところ、原料の2-メチルシクロヘキシルアミンのトランス体：シス体の比（GLC組成比）と実質上同一割合となっていることが明らかとなった。従って、アミド化合物中のトランス配置部分の量：シス配置部分の量の割合は、原料アミンのトランス体：シス体の比率によりコントロールできる。

【0010】

(3)本発明者らは、アミド系化合物中の上記トランス配置部分とシス配置部分との割合を変化させて検討したところ、造核剤であるアミド系化合物中のトランス配置部分の総和（量）が多い造核剤を用いると、該造核剤を含むポリオレフィン樹脂組成物の結晶化温度が高くなり、また、該ポリオレフィン樹脂組成物から得られるポリオレフィン樹脂成形体の剛性が向上する。

【0011】

(4)また、アミド系化合物中のトランス配置部分の総和（量）が多い造核剤は、前記特許文献2に記載の造核剤より融点が高く、熱安定性に優れる。

【0012】

本発明は、これら知見に基づき、更に検討を重ねて完成されたものであって、次の一般式(1)で表されるアミド系化合物又は該化合物の混合物、その製造法、一般式(1)で表されるアミド系化合物の少なくとも1種を含有するポリオレフィン樹脂用造核剤、該アミド系化合物又は該造核剤を含むポリオレフィン樹脂組成物及びその成形体を提案するものである。

【0013】

項1 一般式(1)

【0014】

【化1】



[式中、

aは、2～6の整数を表す。

【0015】

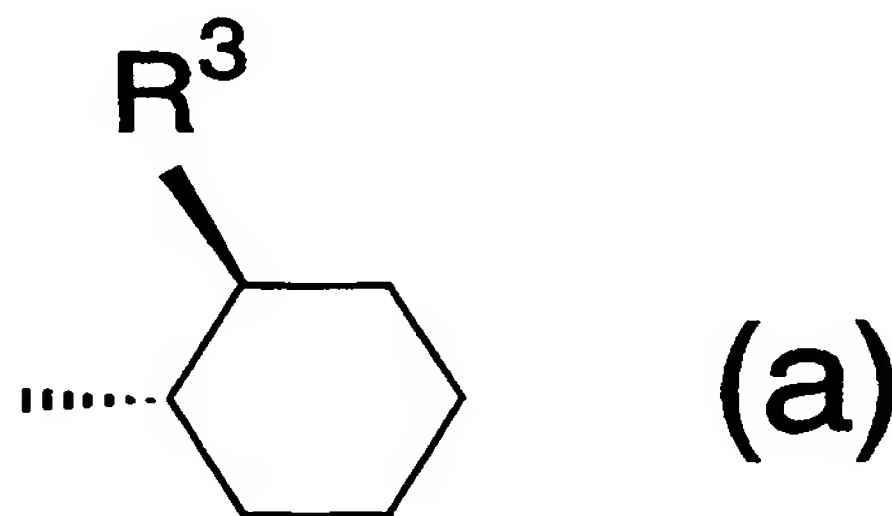
R¹は、炭素数2～30の飽和若しくは不飽和脂肪族ポリカルボン酸残基を表し、該脂肪族ポリカルボン酸残基は2～6価（aと同一の価数）の基である。

【0016】

2～6個のR²基は、同一又は異なって、一般式(a)

【0017】

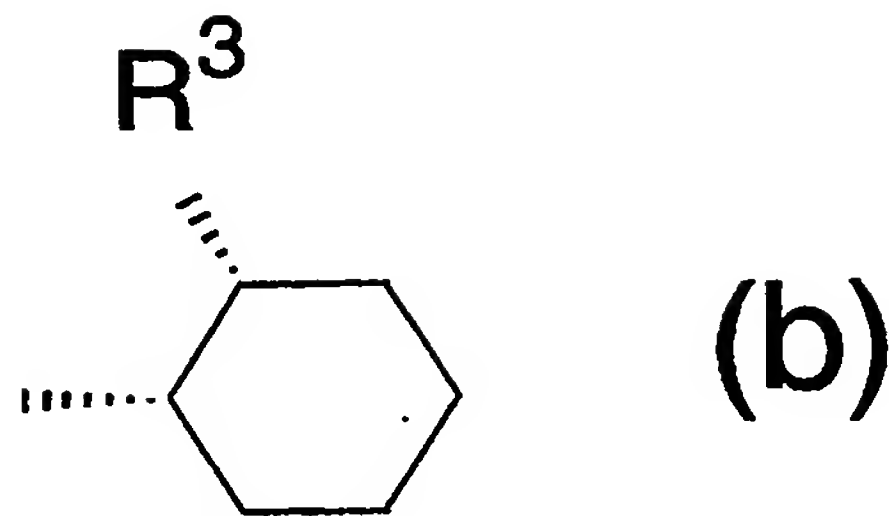
【化2】



(式中、R³は炭素数1～10の直鎖状又は分枝状のアルキル基を表す。)で表されるトランス-2-アルキルシクロヘキシルアミン残基、又は、一般式(b)

【0018】

【化 3】



(式中、 R^3 は炭素数1～10の直鎖状又は分枝状のアルキル基を表す。) で表されるシス-2-アルキルシクロヘキシルアミン残基を表す。]

で表されるアミド系化合物又は該アミド化合物の少なくとも2種の混合物であって、

下記数式(E)で求められる上記一般式(a)で表されるトランス-2-アルキルシクロヘキシルアミン残基の含量(Ctrans)が70～100%であることを特徴とする化合物又は混合物:

$$C_{trans}(\%) = [A_{trans} / (A_{trans} + A_{cis})] \times 100 \quad (E)$$

[式中、

A_{trans} は、上記一般式(a)で表されるトランス-2-アルキルシクロヘキシルアミン残基のFT-IR法で測定されるN-H伸縮振動吸収帯の吸光度を示し、

A_{cis} は、上記一般式(b)で表されるシス-2-アルキルシクロヘキシルアミン残基のFT-IR法で測定されるN-H伸縮振動吸収帯の吸光度を示す。]

【0019】

項2 数式(E)で求められる上記式(a)で表されるトランス-2-アルキルシクロヘキシルアミン残基の含量が75～100%である項1に記載の化合物又は混合物。

【0020】

項3 R^3 が、炭素数1～6の直鎖状又は分枝状のアルキル基である項1又は2に記載の化合物又は混合物。

【0021】

項4 R^3 が、メチル基である項1～3のいずれかに記載の化合物又は混合物。

【0022】

項5 R^3 がメチル基であり、2-メチルシクロヘキシルアミノ基の立体構造が全てトランスである項1～4のいずれかに記載の化合物又は混合物。

【0023】

項6 R^1 が、1, 2, 3, 4-ブタンテトラカルボン酸残基又は1, 2, 3-プロパントリカルボン酸残基である項1～5のいずれかに記載の化合物又は混合物。

【0024】

項7 R^1 が1, 2, 3, 4-ブタンテトラカルボン酸残基であって、数式(E)で求められる上記式(a)で表されるトランス-2-アルキルシクロヘキシルアミン残基の含量が90～100%である項1～5のいずれかに記載の化合物又は混合物。

【0025】

項8 R^1 が1, 2, 3-プロパントリカルボン酸残基であって、数式(E)で求められる上記式(a)で表されるトランス-2-アルキルシクロヘキシルアミン残基の含量が90～100%である項1～6のいずれかに記載の化合物又は混合物。

【0026】

項9 一般式(1)

【0027】

【化 4】



[式中、

a は、2 ～ 6 の整数を表す。

【0 0 2 8】

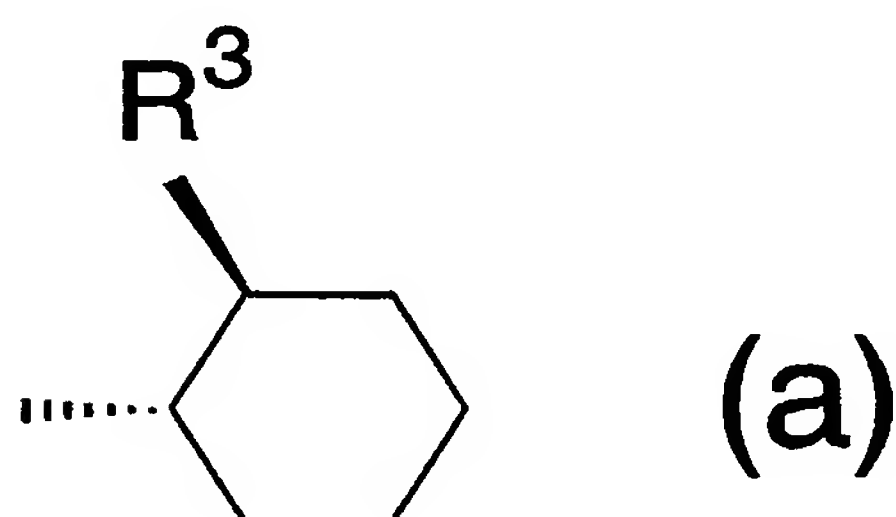
R^1 は、炭素数 2 ～ 3 0 の飽和若しくは不飽和脂肪族ポリカルボン酸残基を表し、該脂肪族ポリカルボン酸残基は 2 ～ 6 価（a と同一の価数）の基である。

【0 0 2 9】

2 ～ 6 個の R^2 基は、同一又は異なって、一般式（a）

【0 0 3 0】

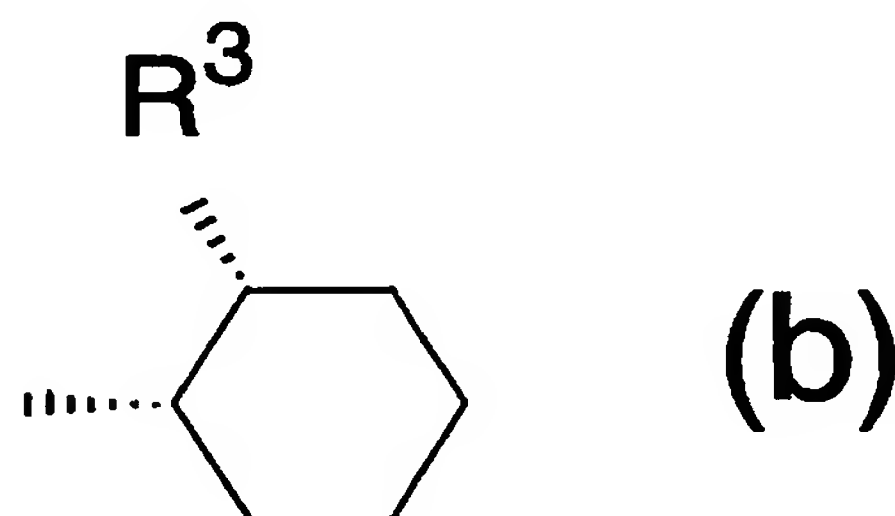
【化 5】



（式中、 R^3 は炭素数 1 ～ 1 0 の直鎖状又は分枝状のアルキル基を表す。）で表されるトランス-2-アルキルシクロヘキシルアミン残基、又は、一般式（b）

【0 0 3 1】

【化 6】



（式中、 R^3 は炭素数 1 ～ 1 0 の直鎖状又は分枝状のアルキル基を表す。）で表されるシス-2-アルキルシクロヘキシルアミン残基を表す。]

で表されるアミド系化合物の少なくとも 1 種を必須成分として含むポリオレフィン樹脂用造核剤であって、

下記数式（E）で求められる上記一般式（a）で表されるトランス-2-アルキルシクロヘキシルアミン残基の含量（Ctrans）が 7 0 ～ 1 0 0 %であることを特徴とするポリオレフィン樹脂用造核剤：

$$C_{\text{trans}} (\%) = [A_{\text{trans}} / (A_{\text{trans}} + A_{\text{cis}})] \times 100 \quad (E)$$

[式中、

A_{trans} は、上記一般式（a）で表されるトランス-2-アルキルシクロヘキシルアミン残基の FT-IR 法で測定される N-H 伸縮振動吸収帯の吸光度を示し、

A_{cis} は、上記一般式（b）で表されるシス-2-アルキルシクロヘキシルアミン残基の FT-IR 法で測定される N-H 伸縮振動吸収帯の吸光度を示す。]

【0 0 3 2】

項 1 0 数式（E）で求められる上記一般式（a）で表されるトランス-2-アルキルシクロヘキシルアミン残基の含量が 7 5 ～ 1 0 0 %である項 9 に記載のポリオレフィン樹

脂用造核剤。

【0033】

項11 R^3 が、炭素数1～6の直鎖状又は分枝状のアルキル基である項9及び10のいずれかに記載のポリオレフィン樹脂用造核剤。

【0034】

項12 R^3 が、メチル基である項9～11のいずれかに記載のポリオレフィン樹脂用造核剤。

【0035】

項13 R^3 がメチル基であり、2-メチルシクロヘキシルアミノ基の立体構造が全てトランスである項9～12のいずれかに記載のポリオレフィン樹脂用造核剤。

【0036】

項14 R^1 が、1, 2, 3, 4-ブタンテトラカルボン酸残基又は1, 2, 3-プロパントリカルボン酸残基である項9～13のいずれかに記載のポリオレフィン樹脂用造核剤。

【0037】

項15 R^1 が1, 2, 3, 4-ブタンテトラカルボン酸残基であって、数式(E)で求められる上記一般式(a)で表されるトランス-2-アルキルシクロヘキシルアミン残基の含量が90～100%である項9～14のいずれかに記載のポリオレフィン樹脂用造核剤。

【0038】

項16 R^1 が1, 2, 3-プロパントリカルボン酸残基であって、数式(E)で求められる上記一般式(a)で表されるトランス-2-アルキルシクロヘキシルアミン残基の含量が90～100%である項9～14のいずれかに記載のポリオレフィン樹脂用造核剤。

【0039】

項17 ポリオレフィン樹脂及び項1～8のいずれかに記載の化合物又は混合物（或いは、項9～16のいずれかに記載のポリオレフィン樹脂用造核剤）を含有するポリオレフィン樹脂組成物。

【0040】

項18 ポリオレフィン樹脂100重量部に対し、請求項1～8のいずれかに記載の化合物又は混合物を、（或いは、項9～16のいずれかに記載のポリオレフィン樹脂用造核剤を、該化合物又は混合物換算で）、0.01～10重量部含有することを特徴とする請求項17に記載のポリオレフィン樹脂組成物。

【0041】

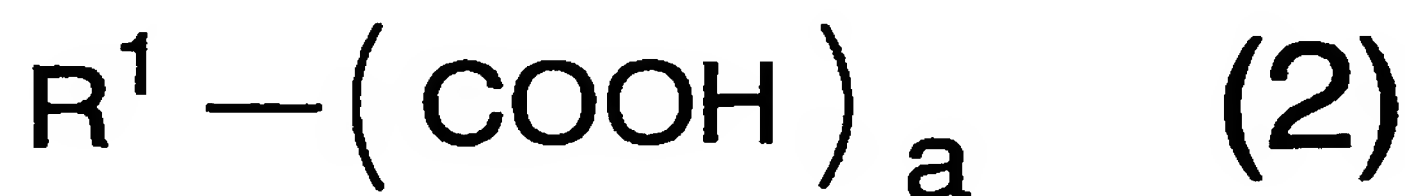
項19 項17又は18に記載のポリオレフィン樹脂組成物を成形することにより得ることができるポリオレフィン樹脂成形体。

【0042】

項20 請求項1に記載の化合物又は混合物の製造法であって、一般式(2)

【0043】

【化7】



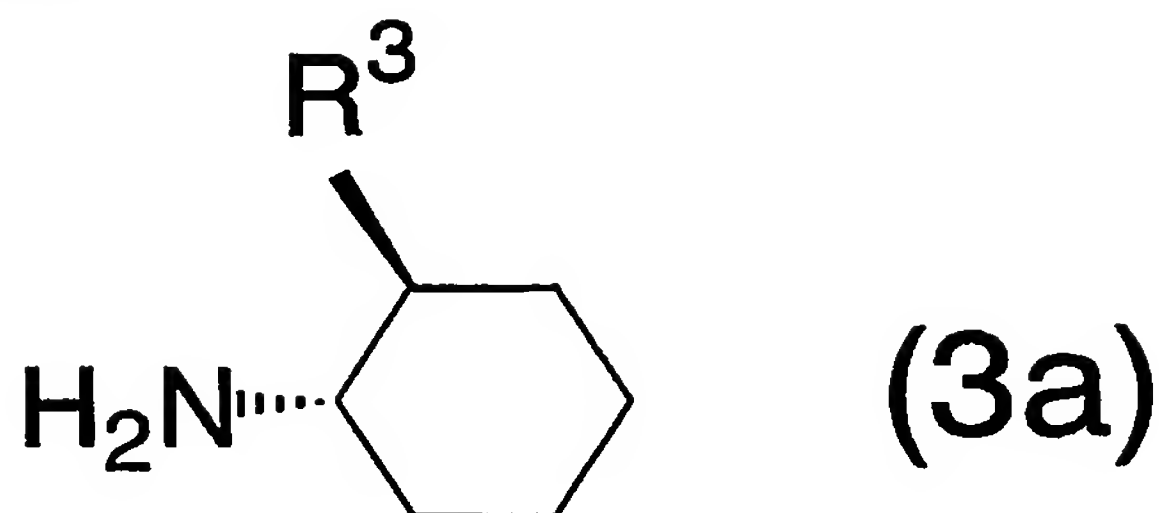
[式中、 R^1 は炭素数2～30の飽和若しくは不飽和脂肪族ポリカルボン酸残基を表す。
 a は2～6の整数を表す。]

で表されるポリカルボン酸又はその反応性誘導体と

(i) 一般式(3a)

【0044】

【化 8】

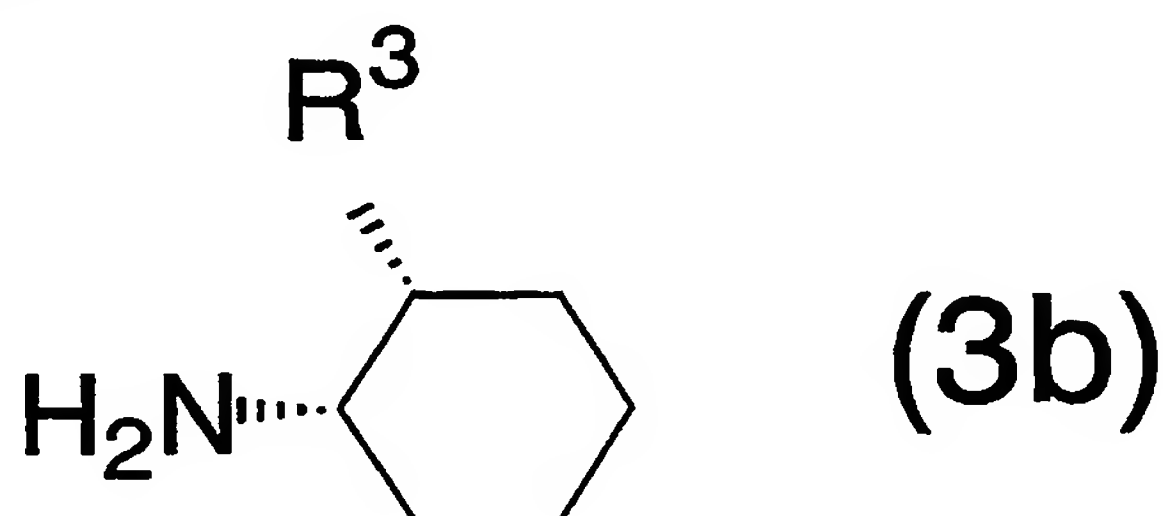


[式中、 R^3 は炭素数1～10の直鎖状又は分枝状のアルキル基を表す。] で表されるトランス-2-アルキルシクロヘキシルアミン、又は、

(ii) 上記一般式 (3a) で表されるトランス-2-アルキルシクロヘキシルアミンと一般式 (3b)

【0045】

【化 9】



[式中、 R^3 は炭素数1～10の直鎖状又は分枝状のアルキル基を表す。] で表されるシス-2-アルキルシクロヘキシルアミンとからなり、ガスクロマトグラフィー (GLC) により測定した一般式 (3a) で表されるトランス-2-アルキルシクロヘキシルアミン含量が70%以上である混合物

とをアミド化反応させることを特徴とする製造法。

【0046】

項 21 項 1～8のいずれかに記載の化合物又は混合物 (或いは、項 9～16のいずれかに記載のポリオレフィン樹脂用造核剤) をポリオレフィン樹脂に配合し、得られる樹脂組成物を成形することを特徴とするポリオレフィン樹脂成形体の剛性向上方法。

【発明の効果】

【0047】

本発明によれば、ポリオレフィン樹脂用造核剤として有用なアミド系化合物が提供される。当該アミド系化合物をポリオレフィン樹脂に配合することにより透明性、結晶性 (耐熱性) 及び剛性に優れたポリオレフィン樹脂組成物及び成形体を得ることができる。

【0048】

また、本発明のアミド系化合物からなるポリオレフィン樹脂用造核剤は、熱安定性に優れている。

【発明を実施するための最良の形態】

【0049】

アミド系化合物

本発明のポリオレフィン樹脂用造核剤として使用するアミド系化合物は、前記一般式 (1) で表されるアミド系化合物又は該アミド系化合物の2種以上の混合物であって、該アミド系化合物を構成する2-アルキルシクロヘキシルアミン残基の立体異性構造におけるトランス体の総和とシス体の総和の比率 (トランス体の総和/シス体の総和) が70/30～100/0の範囲にある化合物である。

【0050】

尚、化合物中のトランス体の総和とシス体の総和の比率は、後述の実施例の項に記載

のように、FT-IR法を用いてそれぞれの立体異性体のN-H伸縮振動に由来するピーク吸光度比により容易に求められる。

【0051】

換言すると、前記一般式(1)で表されるアミド系化合物又は該アミド系化合物の2種以上の混合物は、下記数式(E)で求められる上記トランス-2-アルキルシクロヘキシルアミン残基の含量(Ctrans)が70~100%である。

【0052】

$$C_{trans}(\%) = [A_{trans} / (A_{trans} + A_{cis})] \times 100 \quad (E)$$

[式中、

Atransは、上記一般式(a)で表されるトランス-2-アルキルシクロヘキシルアミン残基のFT-IR法で測定されるN-H伸縮振動吸収帯の吸光度を示し、

Acisは、上記一般式(b)で表されるシス-2-アルキルシクロヘキシルアミン残基のFT-IR法で測定されるN-H伸縮振動吸収帯の吸光度を示す。]

より詳しくは、本発明のアミド系化合物(単独化合物又は混合物)は、例えば、次の態様を包含している。

【0053】

(i) 2~6個のR²基のうち70%以上のR²基がトランス構造であるアミド化合物の1種単独又は2種以上の混合物

(ii) 2~6個のR²基のうち70%以上のR²基がトランス構造であるアミド化合物の少なくとも1種と、2~6個のR²基のうち70%未満のR²基がトランス構造であるアミド化合物の少なくとも1種とからなり、Ctransが70%以上の混合物

(iii) 2~6個のR²基の全てがトランス構造であるアミド化合物の1種単独又は2種以上の混合物

(iv) 2~6個のR²基の全てがトランス構造であるアミド化合物の少なくとも1種と、2~6個のR²基の全てがシス構造であるアミド化合物の少なくとも1種とからなる混合物であって、且つ、Ctransが70%以上の混合物

(v) 上記(i)~(iv)の少なくとも2種からなる混合物であって、且つ、Ctransが70%以上の混合物。

【0054】

<好ましいアミド系化合物>

本発明に係るアミド系化合物の中でも、FT-IR法により測定したトランス構造部分の含量(即ち、前記数式(E)で求められる上記式(a)で表されるトランス-2-アルキルシクロヘキシルアミン残基の含量(Ctrans))が75%以上であるのが好ましい。

【0055】

一般式(1)において、R³は、炭素数1~6、好ましくは1~4の直鎖状又は分枝状のアルキル基、特にメチル基であるのが有利である。

【0056】

また、一般式(1)において、aが3又は4である化合物が好ましい。なかでもR¹が、1, 2, 3, 4-ブタンテトラカルボン酸(以下、「BTC」と略記する。)残基、1, 2, 3-プロパントリカルボン酸(以下、「PTC」と略記する。)残基であるものが好ましい。

【0057】

特に、透明性、剛性、結晶化温度、熱安定性等の物性の点で有利とする観点からは、PTCトリス(2-アルキルシクロヘキシルアミド)に関しては、FT-IR法により測定したトランス構造部分の含量(即ち、前記数式(E)で求められる上記式(a)で表されるトランス-2-アルキルシクロヘキシルアミン残基の含量(Ctrans))が70~100%、特に75~100%であるのが好ましく、90~100%であるのがより好ましい。BTCテトラキス(2-アルキルシクロヘキシルアミド)に関しても、FT-IR法により測定したトランス構造部分の含量が70~100%、特に75~100%であるのが

好ましく、90～100%（殊に95～100%）であるのがより好ましい。

【0058】

これらの中でも、 R^3 がメチル基であり、2-メチルシクロヘキシルアミノ基の立体構造が全てトランスである化合物の1種単独又は2種以上の混合物が好ましい。

【0059】

また、一般式(1)において R^1 が、1, 2, 3, 4-ブタンテトラカルボン酸残基、1, 2, 3-プロパントリカルボン酸残基であり、 R^2 が2-アルキル（炭素数1～6、特にメチル）シクロヘキシルアミン残基であるアミド系化合物が好ましい。

【0060】

一般式(1)で表される化合物のうち、好ましいものとしては、例えば、次の化合物を例示できる。

- 1, 2, 3, 4-ブタンテトラカルボン酸テトラキス（2-メチルシクロヘキシルアミド）
- ）、
- 1, 2, 3, 4-ブタンテトラカルボン酸テトラキス（2-エチルシクロヘキシルアミド）
- ）、
- 1, 2, 3, 4-ブタンテトラカルボン酸テトラキス（2-n-プロピルシクロヘキシルアミド）
- ）、
- 1, 2, 3, 4-ブタンテトラカルボン酸テトラキス（2-i s o-プロピルシクロヘキシルアミド）
- ）、
- 1, 2, 3, 4-ブタンテトラカルボン酸テトラキス（2-n-ブチルシクロヘキシルアミド）
- ）、
- 1, 2, 3, 4-ブタンテトラカルボン酸テトラキス（2-s e c-ブチルシクロヘキシルアミド）
- ）、
- 1, 2, 3, 4-ブタンテトラカルボン酸テトラキス（2-i s o-ブチルシクロヘキシルアミド）
- ）、
- 1, 2, 3, 4-ブタンテトラカルボン酸テトラキス（2-n-ペンチルシクロヘキシルアミド）
- ）、
- 1, 2, 3, 4-ブタンテトラカルボン酸テトラキス（2-n-ヘキシルシクロヘキシルアミド）
- ）、
- 1, 2, 3-プロパントリカルボン酸トリス（2-メチルシクロヘキシルアミド）
- ）、
- 1, 2, 3-プロパントリカルボン酸トリス（2-エチルシクロヘキシルアミド）
- ）、
- 1, 2, 3-プロパントリカルボン酸トリス（2-n-プロピルシクロヘキシルアミド）
- ）、
- 1, 2, 3-プロパントリカルボン酸トリス（2-i s o-プロピルシクロヘキシルアミド）
- ）、
- 1, 2, 3-プロパントリカルボン酸トリス（2-n-ブチルシクロヘキシルアミド）
- ）、
- 1, 2, 3-プロパントリカルボン酸トリス（2-s e c-ブチルシクロヘキシルアミド）
- ）、
- 1, 2, 3-プロパントリカルボン酸トリス（2-i s o-ブチルシクロヘキシルアミド）
- ）、
- 1, 2, 3-プロパントリカルボン酸トリス（2-n-ペンチルシクロヘキシルアミド）
- ）、
- 1, 2, 3-プロパントリカルボン酸トリス（2-n-ヘキシルシクロヘキシルアミド）
- ）。

【0061】

これらのなかでも一般式(1)において、 R^1 が1, 2, 3, 4-ブタンテトラカルボン酸残基又は1, 2, 3-プロパントリカルボン酸残基であり、 R^2 が2-メチルシクロヘキシルアミン残基であるアミド系化合物が好ましい。

【0062】

アミド系化合物の製造法

本発明のアミド系化合物は、種々の方法により合成できるが、一般には、2～6個のカ

ルボキシ基を有する脂肪族ポリカルボン酸又はその反応性誘導体（例えば酸無水物、酸ハライド、低級アルキルエステル）と、一般式 R^2NH_2 （式中、 R^2 は前記に同じ）で表される 2-アルキルシクロヘキシルアミン（トランス体が、GLC 組成(%)で、70%以上であるもの）とを反応させることにより合成できる。上記反応性誘導体を使用する場合は、特に、低級アルキル（炭素数 1～4、特に炭素数 1）エステルが取扱いが容易な点で好ましい。

【0063】

より詳しくは、本発明の製造法は、前記一般式（2）で表されるポリカルボン酸又はその反応性誘導体と

(i) 前記一般式(3a)で表されるトランス-2-アルキルシクロヘキシルアミン、又は

(ii) 前記一般式(3a)で表されるトランス-2-アルキルシクロヘキシルアミンと前記一般式(3b)で表されるシス-2-アルキルシクロヘキシルアミンとからなり、GLC により測定したトランス-2-アルキルシクロヘキシルアミン含量が70%以上である混合物

とをアミド化反応させることを特徴とするものである。

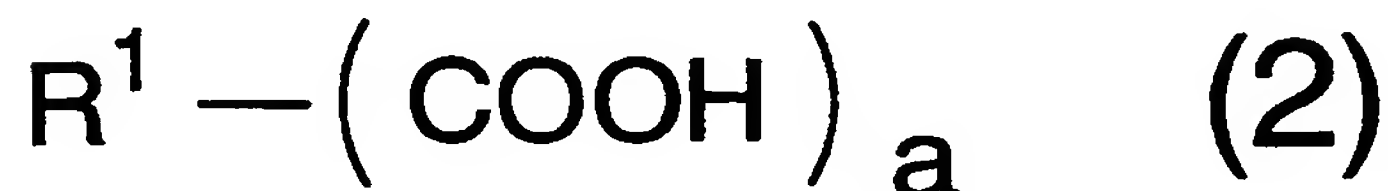
【0064】

<ポリカルボン酸>

上記ポリカルボン酸は、一般式（2）

【0065】

【化10】



[式中、 R^1 は炭素数 2～30 の飽和若しくは不飽和脂肪族ポリカルボン酸残基を表す。
 a は 2～6 の整数を表す。]
で表される。

【0066】

従って、一般式（1）の R^1 で示される「ポリカルボン酸残基」とは、一般式（2）で表される脂肪族ポリカルボン酸から全てのカルボキシ基を除いて得られる残基を指し、 a と同一の価数を有する残基、即ち、2～6 価の基である。また、 R^1 の炭素数は、カルボキシ基を除いて得られるポリカルボン酸残基が有する炭素数を指す。

【0067】

本発明に用いるポリカルボン酸としては、一般式（2）で表される飽和若しくは不飽和脂肪族ポリカルボン酸が挙げられる。かかるポリカルボン酸は、水酸基、アルキル基（炭素数 1～10、好ましくは炭素数 1～4）、アルケニル基（炭素数 2～10、好ましくは 3～4）及びアセトキシ基からなる群から選択される 1 個若しくは 2 個以上（特に 1 又は 2 個）の置換基を有していてもよい。

【0068】

脂肪族ポリカルボン酸としては、一般式（2）において R^1 が炭素数 2～30、好ましくは 3～10 であり、カルボキシ基を 2～6 個（特に 3 又は 4 個）有する飽和又は不飽和のポリカルボン酸が挙げられる。例えば、ジフェニルマロン酸、コハク酸、フェニルコハク酸、ジフェニルコハク酸、グルタル酸、3, 3-ジメチルグルタル酸、アジピン酸、ピメリン酸、スベリン酸、アゼライン酸、セバシン酸、1, 12-ドデカン二酸、1, 14-テトラデカン二酸、1, 18-オクタデカン酸、クエン酸、メタントリカルボン酸、エタントリカルボン酸、プロパントリカルボン酸、プロペントリカルボン酸、カンホロン酸、ブタントリカルボン酸、ペンタントリカルボン酸、ヘキサントリカルボン酸、ヘプタントリカルボン酸、オクタントリカルボン酸、ノナントリカルボン酸、デカントリカルボン酸、アセトキシプロパントリカルボン酸、アセトキシペンタントリカルボン酸、アセト

キシヘプタントリカルボン酸、エタンテトラカルボン酸、プロパンテトラカルボン酸、ブタンテトラカルボン酸、ペンタンテトラカルボン酸、ドデカンテトラカルボン酸、ペンタンペンタカルボン酸、アセトキシペンタンペンタカルボン酸、ペンタンヘキサカルボン酸、テトラデカンヘキサカルボン酸、エチレンジアミン四酢酸、ニトリロ三酢酸、エチレングリコールビス (β -アミノエチルエーテル) N, N, N', N'-四酢酸、ジエチレントリアミン五酢酸、N-ヒドロキシエチルエチレンジアミン-N, N', N'-三酢酸、1, 3-ジアミノプロパン-2-オール-N, N, N', N'-四酢酸、1, 2-ジアミノプロパン-N, N, N', N'-四酢酸、トリエチレントトラミン六酢酸、ニトリロ三プロピオン酸、1, 6-ヘキサメチレンジアミン四酢酸、N-(2-カルボキシエチル)イミノ二酢酸等が例示される。

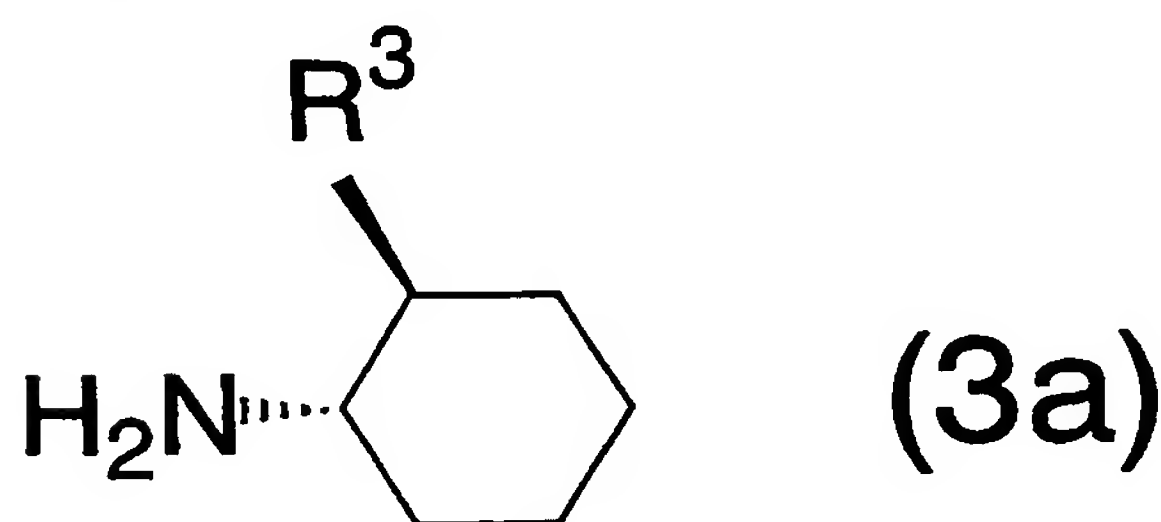
【0069】

<2-アルキルシクロヘキシルアミン>

一般式 (1) の R^2 で示される 2-アルキルシクロヘキシルアミン残基は、下記一般式 (3a)

【0070】

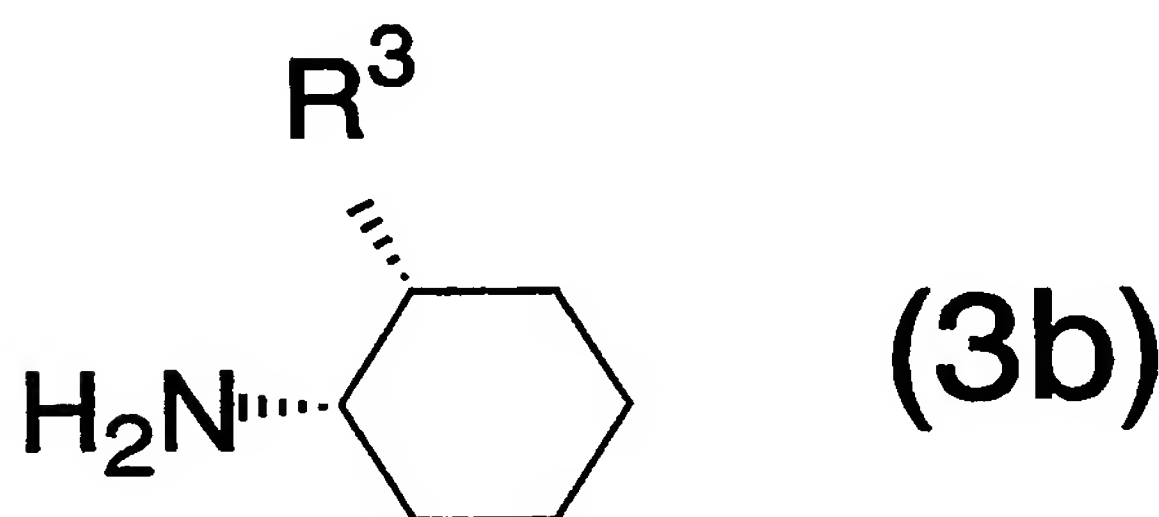
【化11】



[式中、 R^3 は炭素数1～10の直鎖状又は分枝状のアルキル基を表す。]
で表されるトランス-2-アルキルシクロヘキシルアミン又は一般式 (3b)

【0071】

【化12】



[式中、 R^3 は炭素数1～10の直鎖状又は分枝状のアルキル基を表す。]
で表されるシス-2-アルキルシクロヘキシルアミンからアミノ基を除いて得られる残基を指す。

【0072】

2-アルキルシクロヘキシルアミンとしては、2-メチルシクロヘキシルアミン、2-エチルシクロヘキシルアミン、2-n-プロピルシクロヘキシルアミン、2-isopropylシクロヘキシルアミン、2-n-ブチルシクロヘキシルアミン、2-isobutylシクロヘキシルアミン、2-sec-butylシクロヘキシルアミン、2-tert-butylシクロヘキシルアミン、2-n-ペンチルシクロヘキシルアミン、2-n-ヘキシルシクロヘキシルアミン、2-n-ヘプチルシクロヘキシルアミン、2-n-オクチルアミン、2-エチルヘキシルシクロヘキシルアミン、2-n-ノニルシクロヘキシルアミン、2-n-デシルシクロヘキシルアミン等の直鎖状又は分枝状アルキル (炭素数1～10) 基を有する 2-アルキルシクロヘキシルアミン等のシス体、トランス体又はこれらの混合物が例示される。

【0073】

これらのうち、2-メチルシクロヘキシルアミン、2-エチルシクロヘキシルアミン、2-n-プロピルシクロヘキシルアミン、2-iso-プロピルシクロヘキシルアミン、2-n-ブチルシクロヘキシルアミン、2-iso-ブチルシクロヘキシルアミン、2-sec-ブチルシクロヘキシルアミン、2-tert-ブチルシクロヘキシルアミン、2-n-キル等の2-アルキル（炭素数1～5）シクロヘキシルアミン等のシス体、トランス体又はこれらの混合物が好ましく、特に2-メチルシクロヘキシルアミンのシス体、トランス体又はこれらの混合物が例示される。

【0074】

これらのアミンは、単独で又は2種以上を混合してアミド化反応に供することができる。また、これらのアミン（トランス体、シス体、トランス体-シス体混合物）の純度は、100%であってもよいが、若干不純物を含むものであってもかまわない。一般に、2-アルキルシクロヘキシルアミンの純度としては、98重量%以上、好ましくは99重量%以上、より好ましくは99.5重量%以上である。

【0075】

前記のように、アミド系化合物を構成する2-アルキル（炭素数1～10）シクロヘキシルアミン残基の立体異性構造におけるトランス体の総和とシス体の総和の比率（トランス体の総和/シス体の総和）は、70/30～100/0である。

【0076】

換言すると、一般式（1）で表されるアミド系化合物における2～6個のR²基は、全て同一であってもよいし、相異なっているものでもよいが、R²基に関するトランス構造部分の割合（FT-IR法により測定）が70%以上である。また、一般式（1）のアミド系化合物の2種以上の混合物であって、当該混合物中のR²基に関するトランス構造部分の割合（FT-IR法により測定）が70%以上である。

【0077】

そのために、本発明で使用する一般式（1）で表されるアミド系化合物を調製するに当たっては、原料として使用するトランス-2-アルキルシクロヘキシルアミン（トランス体）そのもの、又は、トランス-2-アルキルシクロヘキシルアミンとシス-2-アルキルシクロヘキシルアミン（シス体）とを含有し、トランス-2-アルキルシクロヘキシルアミンの含量（GLCにより測定）が70%以上、特に75～100%、より好ましくは90～100%である混合物を使用する。

【0078】

かかるトランス体純品又はトランス体リッチの混合物は、市販のトランス体及びシス体からなる混合物（GLCにより測定したトランス体含量＝68.4%程度）を、トランス体のみを分離する操作、例えば蒸留等を行なうことにより得られる。かかる蒸留操作は、大気圧下でも減圧下でも行うことができ、一般には、アミンの分解を抑える観点からは、減圧下で行うことが好ましい。蒸留温度としては、特に限定されないが150℃以下、好ましくは100℃以下である。そのため、通常は減圧下で蒸留を行う場合、その圧力としては、特に限定されないが、0.5～15kPa程度、特に1～10kPa程度が好ましい。蒸留は、通常用いられている方法でよく、例えば、単蒸留や多段の蒸留塔等を用いる蒸留が挙げられる。もちろん、これに限定されるものではない。かかる蒸留により、実質上純粋なトランス体のみを得ることも可能であり、また、トランス体含量が70%以上（GLCにより測定）であるトランス体-シス体混合物を得ることも可能である。

【0079】

こうして得られるトランス体純品と、又はGLCにより測定したトランス体含量が70%以上のトランス体-シス体混合物であるアミン原料と、上記一般式（2）で表されるポリカルボン酸又はその反応性誘導体（例えば酸無水物、酸ハライド、エステル等）とをアミド化反応させることにより、所望の一般式（1）で表されるアミド系化合物を合成することができる。

【0080】

また、この方法と同様にして得られる R^2 基のトランス構造部分が 100% の上記アミド系化合物と、他のタイプの立体構造部分を有するアミド系化合物（例えば、分子内の 2 ～ 6 個の R^2 基の全てがシス構造部分であるアミド系化合物、2 ～ 6 個の R^2 基のうちの少なくとも 1 個がトランス構造を有し、残りがシス構造を有する混在型のアミド系化合物等）とを、前記数式 (E) で求められる上記式 (a) で表されるトランス-2-アルキルシクロヘキシルアミン残基の含量 (Ctrans) が 70% 以上となるように混合することにより、所望の一般式 (1) で表されるアミド系化合物を調製することもできる。

【0081】

上記アミド化反応は、公知の方法、例えば、前記特許文献 2 に記載の方法に従って行うことができる。より具体的には、次の方法を採用できる。

【0082】

(i) 一般式 (1) で表されるポリカルボン酸とその 3 ～ 20 当量倍の相当する上記アミン原料とを不活性溶媒中、60 ～ 280℃ で 2 ～ 50 時間反応させる。

【0083】

本製造法においては、反応時間を短縮するために、活性化剤を用いるのがより好ましい。該活性化剤としては、五酸化リン、ポリリン酸、五酸化リン-メタンスルホン酸、亜リン酸エステル（例えば、亜リン酸トリフェニル等）、-ピリジン、亜リン酸エステル-金属塩（例えば、塩化リチウム等）、トリフェニルホスフィン-ヘキサクロロエタン等が例示され、通常、一般式 (1) で表されるポリカルボン酸のカルボキシル基に対して等モル程度使用される。

【0084】

(ii) 一般式 (1) で表されるポリカルボン酸のクロリドとその 3 ～ 6 当量倍のアミン原料とを不活性溶媒中、0 ～ 100℃ で 1 ～ 5 時間反応させる。

【0085】

(iii) 一般式 (1) で表されるポリカルボン酸のポリアルキルエステルとその 3 ～ 30 当量倍のアミン原料とを無溶媒又は不活性溶媒中、無触媒又は触媒の存在下、20 ～ 280℃ で 3 ～ 50 時間反応させる。

【0086】

当該触媒としては、通常のエステル・アミド交換反応に用いられる酸触媒や塩基触媒等が挙げられるが、中でも塩基触媒がより好ましい。具体的には、Li、Na、K、LiH、NaH、KH 等のアルカリ金属及びアルカリ金属水素化物、LiOH、NaOH、KOH 等の金属水酸化物、NaOMe、NaOEt、tert-BuOK 等の金属アルコラート、NaNH₂、LiNPr₂ 等のアルカリ金属アミド等が例示され、通常、ポリカルボン酸のカルボキシル基に対して等モル量程度使用される。

【0087】

上記 (i)、(ii) 及び (iii) 法に係る不活性溶媒としては、ベンゼン、トルエン、キシレン、クロロホルム、クロルベンゼン、ジクロルベンゼン、テトラヒドロフラン、ジオキサン、アセトニトリル、N,N-ジメチルホルムアミド、N,N-ジメチルアセトアミド、N-メチルピロリドン等が例示される。

【0088】

ポリオレフィン樹脂用造核剤

本発明のポリオレフィン樹脂用造核剤は、本発明の一般式 (1) で表されるアミド系化合物（即ち、上記本発明の一般式 (1) で表されるアミド系化合物の 1 種単独又は 2 種以上の混合物）のみを含むものであるか、又は本発明のアミド系化合物と後述の添加剤、ポリオレフィン樹脂用改質剤等とを含有するものである。

【0089】

本発明において、ポリオレフィン樹脂用造核剤として用いられるアミド系化合物の粒径は、本発明の効果が得られる限り特に限定されないが、熔融樹脂に対する溶解速度又は分散性の点からできる限り粒径が小さいものが好ましく、通常、レーザー回折光散乱法で測定した平均粒径が 0.1 ～ 500 μm、好ましくは 1 ～ 200 μm、より好ましくは 1 ～

100 μm の範囲である。

【0090】

本発明に係るアミド系化合物の結晶形態は、本発明の効果が得られる限り特に限定されないが、立方晶、単斜晶、三方晶、六方晶等の任意の結晶形が使用できる。

【0091】

これらの結晶の粒子径は、特に限定されることなく、目的に応じて任意に選択することができる。例えば、ポリオレフィン樹脂へのアミド系化合物の分散、溶解又は融解を短時間としたい場合には、その分散、溶解又は融解混合時の処理温度にも影響されるが、その粒子径としては、最大粒子径が50 μm 以下であり、好ましくは10 μm 以下が推奨される。

【0092】

アミド系化合物の最大粒子径を上記範囲に調整する方法としては、この分野で公知の慣用装置を用いて微粉碎し、これを分級する方法が提示される。具体的には、ジェットミル、例えば、流動層式カウンタージェットミル100AFG（商品名、ホソカワミクロン社製）、超音速ジェットミルPJ M-200（商品名、日本ニューマチック社製）等を用いて微粉碎並びに分級する方法が例示される。

【0093】

本発明の造核剤には、本発明のアミド系化合物に加えて、必要に応じて、添加剤として、芳香族カルボン酸金属塩、芳香族カルボン酸無水物、芳香族リン酸エステルの金属塩、芳香族リン酸エステルのアミン塩、ソルビトール誘導体、脂肪族ジカルボン酸金属塩若しくはアミン塩、ロジン酸誘導体、水添ナジック酸金属塩等の一般にポリオレフィン樹脂組成物の結晶化温度及び／又は透明性を高め得る化合物を本発明の効果を損なわない範囲で併用することができる。

【0094】

具体的には、安息香酸ナトリウム、*p*-tert-ブチル安息香酸ナトリウム、ヒドロキシビス(*p*-tert-ブチル安息香酸)アルミニウム等の芳香族カルボン酸金属塩；安息香酸、*p*-tert-ブチル安息香酸、アルキル置換安息香酸等の芳香族カルボン酸無水物；ナトリウム-2, 2'-メチレンビス(4, 6-ジ-tert-ブチルフェニル)ホスフェート、ナトリウム-2, 2'-エチリデンビス(4, 6-ジ-tert-ブチルフェニル)ホスフェート、リチウム-2, 2'-メチレンビス(4, 6-ジ-tert-ブチルフェニル)ホスフェート、リチウム-2, 2'-エチリデンビス(4, 6-ジ-tert-ブチルフェニル)ホスフェート、ナトリウム-2, 2'-エチリデンビス(4-*i*-プロピル-6-tert-ブチルフェニル)ホスフェート、リチウム-2, 2'-メチレンビス(4-メチル-6-tert-ブチルフェニル)ホスフェート、リチウム-2, 2'-メチレンビス(4-エチル-6-tert-ブチルフェニル)ホスフェート等の芳香族リン酸エステルの金属塩；リン酸2, 2'-メチレンビス(4, 6-ジ-tert-ブチルフェニル)と脂肪酸族多価アミンのアミン塩等の芳香族リン酸エステルのアミン塩；ジベンジリデンソルビトール、ビス(*p*-メチルベンジリデン)ソルビトール、ビス(*p*-エチルベンジリデン)ソルビトール、ビス(3, 4-ジメチルベンジリデン)ソルビトール等のソルビトール誘導体；ロジン酸ナトリウム塩、ロジン酸カリウム塩、ロジン酸マグネシウム塩等のロジン酸金属塩、ロジン酸アミド系化合物等のロジン酸誘導体；水添ナジック酸二ナトリウム等の水添ナジック酸金属塩等が例示される。これらの化合物は、単独で使用しても、二種以上組み合わせて使用してもよい。

【0095】

本発明の造核剤には、更に、その他の任意成分として従来公知のポリオレフィン用改質剤を含むことができる。例えば、ポリオレフィン等衛生協議会編「ポジティブリストの添加剤要覧」（2002年1月）に記載されている各種添加剤が挙げられ、より具体的には、安定剤（金属化合物、エポキシ化合物、窒素化合物、燐化合物、硫黄化合物等）、紫外線吸収剤（ベンゾフェノン系化合物、ベンゾトリアゾール系化合物等）、酸化防止剤（フェノール系化合物、亜リン酸エステル系化合物、イオウ系化合物等）、界面活性剤、滑剤

(パラフィン、ワックス等の脂肪族炭化水素、炭素数 8 ～ 22 の高級脂肪酸、炭素数 8 ～ 22 の高級脂肪酸金属 (Li、Na、K、Al、Ca、Mg、Zn) 塩、炭素数 8 ～ 22 の高級脂肪族アルコール、ポリグリコール、炭素数 4 ～ 22 の高級脂肪酸と炭素数 4 ～ 18 の脂肪族 1 価アルコールとのエステル、炭素数 8 ～ 22 の高級脂肪酸アミド、シリコン油、ロジン誘導体等)、充填剤 (タルク、ハイドロタルサイト、マイカ、ゼオライト、パーライト、珪藻土、炭酸カルシウム、ガラス繊維等)、発泡剤、発砲助剤、ポリマー添加剤の他、可塑剤 (ジアルキルフタレート、ジアルキルヘキサヒドロフタレート等)、架橋剤、架橋促進剤、帯電防止剤、難燃剤、分散剤、有機無機の顔料、加工助剤、他の核剤等が例示される。

【0096】

上記添加剤、ポリオレフィン用改質剤を使用する場合、これらは、上記本発明の一般式 (1) で表されるアミド系化合物の 1 種単独又は 2 種以上の混合物に、例えば、ドライブレンドして混合物とする等の公知の方法に従って配合すればよい。

【0097】

ポリオレフィン樹脂組成物

本発明のポリオレフィン樹脂組成物は、本発明のアミド系化合物又は本発明のアミド系化合物を含有する造核剤をポリオレフィン樹脂に常法にしたがって配合することにより得られる。

【0098】

本発明のポリオレフィン樹脂組成物の調製法としては、所望の該樹脂組成物が得られる限り、限定されることなく、常法を用いることができる。例えば、ポリオレフィン樹脂 (粉末又はフレーク)、本発明のアミド系化合物、及び必要に応じて上記のポリオレフィン用樹脂改質剤を、慣用の混合機、例えば、ヘンシェルミキサー、リボンブレンダー、Vブレンダー等を用いて混合したブレンドタイプのポリオレフィン樹脂組成物を得る方法、又は、このブレンドタイプのポリオレフィン樹脂組成物を、慣用の混練機、例えば、一軸又は二軸の押し出し機等を用いて、通常 160 ～ 300℃、好ましくは 180 ～ 260℃ の温度で熔融混練し、押し出されたストランドを、冷却し、得られたストランドをカッティングすることでペレットタイプとする方法などが例示される。

【0099】

本発明のアミド系化合物を、そのまま、又は、上記添加剤、ポリオレフィン用改質剤等と配合された造核剤の形態で、ポリオレフィン樹脂に配合する場合、本発明アミド系化合物の配合量 (造核剤として配合する場合は、本発明のアミド系化合物換算での配合量) は、所定の効果が得られる限り特に限定されるものではなく、広い範囲から適宜選択することができるが、通常、ポリオレフィン樹脂 100 重量部当たり、0.01 ～ 10 重量部、好ましくは 0.03 ～ 5 重量部、さらに好ましくは 0.05 ～ 3 重量部である。これらの範囲内で配合することにより十分に本発明の効果をを得ることができる。

【0100】

0.01 重量部未満では核剤効果が不十分であり、組成物の機械的特性 (例えば、剛性等) が低い。一方、10 重量部を越えても更なる効果の向上は得られない。

【0101】

アミド系化合物のポリオレフィン樹脂への添加方法としては、慣用されている装置、例えば、一軸又は二軸の押し出し機等を用いる一段添加法が好ましいが、2 ～ 15 重量% 程度の高濃度マスターバッチの形態による二段添加法を採用しても何ら差し支えない。

【0102】

本発明で使用するポリオレフィン樹脂としては、ポリエチレン系樹脂、ポリプロピレン系樹脂及びポリブテン系樹脂が例示され、より具体的には、高密度ポリエチレン、中密度ポリエチレン、直鎖状ポリエチレン、エチレン含量 50 重量% 以上、好ましくは 70 重量% 以上のエチレンコポリマー、プロピレンホモポリマー、プロピレン 50 重量% 以上、好ましくは 70 重量% 以上のプロピレンコポリマー、ブテンホモポリマー、ブテン含量 50 重量% 以上、好ましくは 70 重量% 以上のブテンコポリマー、メチルペンテンホモポリマ

一、メチルペンテン含量50重量%以上、好ましくは70重量%以上のメチルペンテンコポリマー、ポリブタジエン等が例示される。

【0103】

上記コポリマーはランダムコポリマーであってもよく、ブロックコポリマーであってもよい。これらの樹脂の立体規則性がある場合は、アイソタクチックでもシンジオタクチックでもよい。

【0104】

上記コポリマーを構成し得るモノマーとして、具体的にはエチレン、プロピレン、ブテン、ペンテン、ヘキセン、ヘプテン、オクテン、ノネン、デセン、ウンデセン、ドデセン等の炭素数2～12の α -オレフィン、1,4-エンドメチレンシクロヘキセン等のビシクロ型モノマー、(メタ)アクリル酸メチル、(メタ)アクリル酸エチル等の(メタ)アクリル酸エステル、酢酸ビニル等が例示できる。

【0105】

かかる重合体を製造するために適用される触媒としては、一般に使用されているチーグラ-ナッタ型触媒はもちろん、遷移金属化合物(例えば、三塩化チタン、四塩化チタン等のチタンのハロゲン化物)を塩化マグネシウム等のハロゲン化マグネシウムを主成分とする担体に担持してなる触媒と、アルキルアルミニウム化合物(トリエチルアルミニウム、ジエチルアルミニウムクロリド等)とを組み合わせる触媒系やメタロセン触媒も使用できる。

【0106】

本発明に係るポリオレフィン樹脂の推奨されるメルトフローレート(以下、「MFR」と略記する。JIS K 7210-1995)は、その適用する成形方法により適宜選択されるが、通常、0.01～200g/10分、好ましくは0.05～100g/10分である。

【0107】

本発明に係るポリオレフィン樹脂組成物には、使用目的やその用途に応じて適宜、上記の従来公知のポリオレフィン用改質剤を本発明の効果を損なわない範囲で添加することができる。

【0108】

ポリオレフィン樹脂成形体および成形体の剛性向上方法

本発明のポリオレフィン樹脂成形体は、上記本発明のポリオレフィン樹脂組成物を、慣用されている成形法に従って成形することにより得られる。

【0109】

本発明にかかるポリオレフィン樹脂組成物を成形するに際しては、射出成形、押出成形、ブロー成形、圧空成形、回転成形、フィルム成形等の従来公知の成形方法のいずれをも採用できる。成形条件としては、従来採用されている条件が広い範囲から適宜選択できる。

【0110】

本発明により得られるポリオレフィン樹脂成形体は、後述の実施例からも明らかなように、優れた剛性を有している。従って、本発明は、本発明の一般式(1)で表される化合物の1種単独又は2種以上の混合物又は本発明の造核剤をポリオレフィン樹脂に配合し、得られる樹脂組成物を成形することを特徴とするポリオレフィン樹脂成形体の剛性向上方法を提供するものである。

【0111】

こうして得られた本発明のポリオレフィン樹脂成形体は、従来、リン酸金属塩類、カルボン酸金属塩類、ベンジリデンソルビトール類等を核剤として配合してなるポリオレフィン樹脂組成物が用いられてきたと同様の分野において適用され、具体的には、熱や放射線等により滅菌されるディスポーザブル注射器、輸液・輸血セット、採血器具等の医療器具類；放射線等により滅菌される食品・植物等の包装物；衣料ケースや衣料保存用コンテナ等の各種ケース類；食品を熱充填するためのカップ、レトルト食品の包装容器；電子レ

ンジ用容器；ジュース、茶等の飲料用、化粧品用、医薬品用、シャンプー用等の缶、ビン等の容器；味噌、醤油等の調味料用容器及びキャップ；水、米、パン、漬物等の食品用ケース及び容器；冷蔵庫用ケース等の雑貨；文具；電気・機械部品；自動車用部品等の素材として好適である。

【実施例】

【0112】

以下、実施例及び比較例を揚げ、本発明を詳しく説明するが、本発明はこれら実施例に限定されるものではない。

【0113】

本発明のポリオレフィン樹脂用造核剤のアミド系化合物の融点、トランス-2-アルキルシクロヘキシルアミン残基の含量、ポリオレフィン樹脂成形体のヘイズ値(%)、結晶化温度(℃)及び曲げ弾性率(kg/mm²)を以下の方法により測定し、評価した。

【0114】

1) 融点(℃)

示差走査熱量計(商品名「DSC-50」、(株)島津製作所製)を用いて、以下の条件にて測定し、最大吸熱ピークのピークトップを融点とした：

窒素流量：30ml/分、昇温速度：10℃/分、試料重量：5mg、標準試料：シリカゲル5mg。

【0115】

2) トランス-2-アルキルシクロヘキシルアミン残基の含量(Ctrans)

FT-IR(商品名「Spectrum One」、パーキンエルマー社製)を用いて、3400から3100cm⁻¹に現れるN-H伸縮振動の吸収帯について、トランス構造として存在する第二級アミドの吸収帯とシス構造として存在する第二級アミドの吸収帯の吸光度比から、下記の式に従って、トランス-2-アルキルシクロヘキシルアミン残基の含量(Ctrans)を求めた。

【0116】

$$C_{trans}(\%) = [A_{trans} / (A_{trans} + A_{cis})] \times 100 \quad (E)$$

[式中、

Atransは、上記一般式(a)で表されるトランス-2-アルキルシクロヘキシルアミン残基のFT-IR法で測定されるN-H伸縮振動吸収帯の吸光度を示し、

Acisは、上記一般式(b)で表されるシス-2-アルキルシクロヘキシルアミン残基のFT-IR法で測定されるN-H伸縮振動吸収帯の吸光度を示す。]

【0117】

3) ヘイズ値(%)

東洋精機製作所製のヘイズメーターを用いて、JIS K-6714、JIS K-6717に準じて測定した。得られた数値が小さい程、透明性に優れている。

【0118】

4) 結晶化温度Tc(℃)

示差走査熱量計(商品名「DSC7」、パーキンエルマー社製)を用いて、JIS K-7121に準じて測定した。結晶化温度Tcが高い程、結晶化速度が速く、成形サイクルの短縮が可能である。

【0119】

5) 曲げ弾性率(kg/mm²)

インストロン万能試験機を用いて、JIS K7203-1982に準じて測定した。尚、試験温度は25℃、試験速度は10mm/分とした。曲げ弾性率の値が大きい程、剛性に優れている。

【0120】

6) 熱安定性：10%重量減少温度(℃)

示差熱重量同時測定装置(商品名「TG-DTA2000」、(株)マック・サイエンス製)を用いて、窒素流量：100ml/分、昇温速度：10℃/分、試料重量：10mgの条件

にて測定した。10%重量減少温度が高い程、熱安定性に優れている。

【0121】

実施例 1

(1) 攪拌機、温度計、冷却管及びガス導入口を備えた500mlの4ツ口フラスコにPTC 9.7g (0.055モル)とN-メチルピロリドン100gを秤取り、窒素雰囲気下、室温にて攪拌しながらPTCを完全溶解させた。続いて、2-メチルシクロヘキシルアミン (トランス体:シス体=100.0:0.0、GLC組成%) 20.5g (0.1815モル)、亜リン酸トリフェニル56.3g (0.1815モル)、ピリジン14.4g (0.1815モル)及びN-メチルピロリドン50gを加え、窒素雰囲気下、攪拌しながら100℃で4時間反応を行った。冷却後、反応溶液をイソプロピルアルコール500mlと水500mlの混合溶液中にゆっくり注ぎ込み、40から50℃にて1時間攪拌後、析出した白色沈殿物を濾別した。更に、得られた白色固体を40から50℃のイソプロピルアルコール500mlで2回洗浄した後、100℃、133Paにて6時間乾燥した。

【0122】

得られた乾燥物を乳鉢で粉碎し、目開き106 μ mの標準篩い (JIS Z-8801規格)に通して、1, 2, 3-プロパントリカルボン酸トリス (2-メチルシクロヘキシルアミド) (以下、「PTC-2MeCHA」と略記する。) 20.3g (収率80%)を得た。

【0123】

得られた白色粉体の融点とトランス-2-メチルシクロヘキシルアミン残基含量 (C_{trans})を測定し、その評価結果を表1に記載した。また、得られた白色固体の赤外線特性吸収 (C=O伸縮振動 (アミドI吸収帯) 及びN-H変角振動 (アミドII吸収帯)) 及び10%重量減少温度を表1に示す。

【0124】

(2) 次に、アイソタクチックホモポリプロピレン樹脂 (MFR=30g/10分、以下、「h-PP」と略記する。) 100重量部に対して上記方法により調製したPTC-2MeCHAを0.2重量部添加し、更に、テトラキス [メチレン-3- (3, 5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェニル) プロピオネート] メタン (チバ・スペシャルティー・ケミカルズ社製、商品名「IRGANOX 1010」) 0.05重量部、トリス (2, 4-ジ-tert-ブチルフェニル) ホスファイト (チバ・スペシャルティー・ケミカルズ社製、商品名「IRGAFOS 168」) 0.05重量部及びステアリン酸カルシウム0.05重量部を配合し、ヘンシェルミキサーで1000rpm、5分間ドライブレンドした。

【0125】

次に、樹脂温度240℃で直径25mmの一軸押出機を用いて熔融混練して、押し出されたストランドを水冷し、次に得られたストランドを切断してペレット状ポリオレフィン樹脂組成物を得た。

【0126】

得られたペレットを樹脂温度240℃、金型温度40℃の条件下で射出成形し、ポリオレフィン樹脂成形体 (試験片) を調製した。得られた試験片のヘイズ値、結晶化温度及び曲げ弾性率を測定し、その評価結果を表1に記載した。

【0127】

実施例 2

アミンとして2-メチルシクロヘキシルアミン (トランス体:シス体=90.3:9.7、GLC組成%)を用いた他は実施例1と同様に行い、その評価結果を表1に記載した。反応により得られたPTC-2MeCHAは、20.3g (収率80%)であった。

【0128】

実施例 3

アミンとして2-メチルシクロヘキシルアミン (トランス体:シス体=77.2:22.8、GLC組成%)を用いた他は実施例1と同様に行い、その評価結果を表1に記載した。

． 8、GLC組成%)を用いた他は実施例1と同様に行い、その評価結果を表1に記載した。反応により得られたPTC-2MeCHAは、20.0g(収率79%)であった。

【0129】

実施例4

アミンとして2-メチルシクロヘキシルアミン(トランス体：シス体=71.9：28.1、GLC組成%)を用いた他は実施例1と同様に行い、その評価結果を表1に記載した。反応により得られたPTC-2MeCHAは、19.9g(収率78%)であった。

【0130】

比較例1

アミンとして2-メチルシクロヘキシルアミン(トランス体：シス体=68.2：31.8、GLC組成%)を用いた他は実施例1と同様に行い、その評価結果を表1に記載した。反応により得られたPTC-2MeCHAは、19.3g(収率76%)であった。

【0131】

比較例2

アミンとして2-メチルシクロヘキシルアミン(トランス体：シス体=58.9：41.1、GLC組成%)を用いた他は実施例1と同様に行い、その評価結果を表1に記載した。反応により得られたPTC-2MeCHAは、19.3g(収率76%)であった。

【0132】

比較例3

アミンとして2-メチルシクロヘキシルアミン(トランス体：シス体=50.4：49.6、GLC組成%)を用いた他は実施例1と同様に行い、その評価結果を表1に記載した。反応により得られたPTC-2MeCHAは、18.0g(収率71%)であった。

【0133】

比較例4

アミンとして2-メチルシクロヘキシルアミン(トランス体：シス体=26.4：73.6、GLC組成%)を用いた他は実施例1と同様に行い、その評価結果を表1に記載した。反応により得られたPTC-2MeCHAは、15.5g(収率61%)であった。

【0134】

比較例5

アミンとして2-メチルシクロヘキシルアミン(トランス体：シス体=1.0：99.0、GLC組成%)を用いた他は実施例1と同様に行い、その評価結果を表1に記載した。反応により得られたPTC-2MeCHAは、11.7g(収率46%)であった。

【0135】

実施例5

多価カルボン酸として1,2,3,4-ブタンテトラカルボン酸9.4g(0.04モル)、アミンとして2-メチルシクロヘキシルアミン(トランス体：シス体=100.0：0.0、GLC組成%)19.9g(0.176モル)、亜リン酸トリフェニル54.6g(0.176モル)、ピリジン13.9g(0.176モル)を用いた他は実施例1と同様に行い、その評価結果を表1に記載した。反応により得られた1,2,3,4-ブタンテトラカルボン酸テトラキス(2-メチルシクロヘキシルアミド)(以下、「BTC-2MeCHA」と略記する。)は、16.0g(収率65%)であった。

【0136】

実施例6

アミンとして2-メチルシクロヘキシルアミン(トランス体：シス体=90.3：9.7、GLC組成%)を用いた他は実施例5と同様に行い、その評価結果を表1に記載した。反応により得られたBTC-2MeCHAは、18.7g(収率76%)であった。

【0137】

実施例7

アミンとして2-メチルシクロヘキシルアミン(トランス体：シス体=77.2：22.8、GLC組成%)を用いた他は実施例5と同様に行い、その評価結果を表1に記載し

た。反応により得られたBTC-2MeCHAは、18.7 g (収率76%)であった。

【0138】

実施例 8

アミンとして2-メチルシクロヘキシルアミン (トランス体:シス体=71.9:28.1、GLC組成%)を用いた他は実施例5と同様に行い、その評価結果を表1に記載した。反応により得られたBTC-2MeCHAは、18.7 g (収率76%)であった。

【0139】

比較例 6

アミンとして2-メチルシクロヘキシルアミン (トランス体:シス体=69.0:31.0、GLC組成%)を用いた他は実施例5と同様に行い、その評価結果を表1に記載した。反応により得られたBTC-2MeCHAは、18.7 g (収率76%)であった。

【0140】

比較例 7

アミンとして2-メチルシクロヘキシルアミン (トランス体:シス体=54.1:45.9、GLC組成%)を用いた他は実施例5と同様に行い、その評価結果を表1に記載した。反応により得られたBTC-2MeCHAは、18.7 g (収率76%)であった。

【0141】

比較例 8

アミンとして2-メチルシクロヘキシルアミン (トランス体:シス体=2.8:97.2、GLC組成%)を用いた他は実施例5と同様に行い、その評価結果を表1に記載した。反応により得られたBTC-2MeCHAは、19.4 g (収率79%)であった。

【0142】

【表 1】

表 1

	アミン トラン ス体 (%)	樹脂	アミド化合 物	Ctrans * (%)	アミド I 吸収帯 (cm ⁻¹)	アミド II 吸収帯 (cm ⁻¹)	融点 (°C)	10%重量 減少温度 (°C)	ヘイ ズ値 (%)	Tc (°C)	曲げ弾性率 (kg/mm ²)
実施例 1	100.0	h-PP	PTC-2MeCHA	100.0	1 6 4 3	1 5 4 4	342.9	3 5 2	2 0	1 2 5	2 0 6
実施例 2	90.3	h-PP	PTC-2MeCHA	90.3	1 6 4 3	1 5 4 3	332.6	3 4 8	1 9	1 2 1	2 0 3
実施例 3	77.2	h-PP	PTC-2MeCHA	77.2	1 6 4 3	1 5 4 2	321.0	3 4 2	1 9	1 2 0	2 0 0
実施例 4	71.9	h-PP	PTC-2MeCHA	71.9	1 6 4 3	1 5 4 2	316.9	3 3 9	1 9	1 2 0	2 0 0
比較例 1	68.2	h-PP	PTC-2MeCHA	68.2	1 6 4 3	1 5 4 2	314.8	3 3 7	1 9	1 2 0	2 0 0
比較例 2	58.9	h-PP	PTC-2MeCHA	58.9	1 6 4 3	1 5 4 2	302.4	—	2 1	1 2 0	1 9 9
比較例 3	50.4	h-PP	PTC-2MeCHA	50.4	1 6 4 3	1 5 4 2	296.4	—	2 5	1 2 0	1 9 6
比較例 4	26.4	h-PP	PTC-2MeCHA	26.4	1 6 4 3	1 5 4 2	270.5	—	5 2	1 2 0	1 6 9
比較例 5	1.0	h-PP	PTC-2MeCHA	1.0	1 6 4 3	1 5 4 2	226.0	—	6 5	1 1 0	1 4 6
実施例 5	100.0	h-PP	BTC-2MeCHA	100.0	1 6 3 9	1 5 4 2	378.8	3 3 7	3 8	1 2 6	2 1 7
実施例 6	90.3	h-PP	BTC-2MeCHA	90.3	1 6 3 9	1 5 4 2	373.8	3 3 1	4 1	1 2 5	2 1 4
実施例 7	77.2	h-PP	BTC-2MeCHA	77.2	1 6 3 9	1 5 4 0	363.9	3 3 0	3 9	1 2 5	2 1 3
実施例 8	71.9	h-PP	BTC-2MeCHA	71.9	1 6 3 9	1 5 4 0	360.0	3 2 7	3 9	1 2 5	2 1 1
比較例 6	69.0	h-PP	BTC-2MeCHA	69.0	1 6 3 9	1 5 4 0	357.9	3 2 6	3 9	1 2 5	2 1 0
比較例 7	54.1	h-PP	BTC-2MeCHA	54.1	1 6 3 9	1 5 4 0	347.5	—	3 4	1 2 5	2 0 0
比較例 8	2.8	h-PP	BTC-2MeCHA	2.8	1 6 4 0	1 5 3 6	310.2	—	5 3	1 2 3	1 7 8

* トランス-2-メチルシクロヘキシルアミン残基の含量 (F T - I R 法により測定)

エチレン含量 3. 0 重量%のアイソタクチックランダムポリプロピレン樹脂 (MFR = 20 G / 10 分、以下、「r - P P」と略記する。) を用いた他は実施例 1 と同様に行い、その評価結果を表 2 に記載した。

【0 1 4 3】

実施例 1 0

r - P P を用いた他は実施例 2 と同様に行い、その評価結果を表 2 に記載した。

【0 1 4 4】

実施例 1 1

r - P P を用いた他は実施例 3 と同様に行い、その評価結果を表 2 に記載した。

【0 1 4 5】

実施例 1 2

r - P P を用いた他は実施例 4 と同様に行い、その評価結果を表 2 に記載した。

【0 1 4 6】

比較例 9

r - P P を用いた他は比較例 1 と同様に行い、その評価結果を表 2 に記載した。

【0 1 4 7】

比較例 1 0

r - P P を用いた他は比較例 2 と同様に行い、その評価結果を表 2 に記載した。

【0 1 4 8】

比較例 1 1

r - P P を用いた他は比較例 3 と同様に行い、その評価結果を表 2 に記載した。

【0 1 4 9】

比較例 1 2

r - P P を用いた他は比較例 4 と同様に行い、その評価結果を表 2 に記載した。

【0 1 5 0】

比較例 1 3

r - P P を用いた他は比較例 5 と同様に行い、その評価結果を表 2 に記載した。

【0 1 5 1】

実施例 1 3

r - P P を用いた他は実施例 5 と同様に行い、その評価結果を表 2 に記載した。

【0 1 5 2】

実施例 1 4

r - P P を用いた他は実施例 6 と同様に行い、その評価結果を表 2 に記載した。

【0 1 5 3】

実施例 1 5

r - P P を用いた他は実施例 7 と同様に行い、その評価結果を表 2 に記載した。

【0 1 5 4】

実施例 1 6

r - P P を用いた他は実施例 8 と同様に行い、その評価結果を表 2 に記載した。

【0 1 5 5】

比較例 1 4

r - P P を用いた他は比較例 6 と同様に行い、その評価結果を表 2 に記載した。

【0 1 5 6】

比較例 1 5

r - P P を用いた他は比較例 7 と同様に行い、その評価結果を表 2 に記載した。

【0 1 5 7】

比較例 1 6

r - P P を用いた他は比較例 8 と同様に行い、その評価結果を表 2 に記載した。

【0 1 5 8】

【表 2】

表 2

	アミント ランス体 含量 (%)	樹脂	アミド化合物	Ctrans* (%)	融 点 (℃)	10%重量 減少温度 (℃)	ヘイズ 値 (%)	Tc (℃)	曲げ弾性率 (kg/mm ²)
実施例 9	100.0	r-PP	PTC-2MeCHA	100.0	342.9	352	12	115	132
実施例 10	90.3	r-PP	PTC-2MeCHA	90.3	332.6	348	11	106	127
実施例 11	77.2	r-PP	PTC-2MeCHA	77.2	321.0	342	10	106	127
実施例 12	71.9	r-PP	PTC-2MeCHA	71.9	316.9	339	10	106	127
比較例 9	68.2	r-PP	PTC-2MeCHA	68.2	314.8	337	10	106	127
比較例 10	58.9	r-PP	PTC-2MeCHA	58.9	302.4	—	11	106	127
比較例 11	50.4	r-PP	PTC-2MeCHA	50.4	296.4	—	11	106	127
比較例 12	26.4	r-PP	PTC-2MeCHA	26.4	270.5	—	23	106	118
比較例 13	1.0	r-PP	PTC-2MeCHA	1.0	226.0	—	72	99	91
実施例 13	100.0	r-PP	BTC-2MeCHA	100.0	378.8	337	28	117	133
実施例 14	90.3	r-PP	BTC-2MeCHA	90.3	373.8	331	30	116	130
実施例 15	77.2	r-PP	BTC-2MeCHA	77.2	363.9	330	27	116	130
実施例 16	71.9	r-PP	BTC-2MeCHA	71.9	360.0	327	26	116	129
比較例 14	69.0	r-PP	BTC-2MeCHA	69.0	357.9	326	26	116	129
比較例 15	54.1	r-PP	BTC-2MeCHA	54.1	347.5	—	23	115	122
比較例 16	2.8	r-PP	BTC-2MeCHA	2.8	310.2	—	32	108	119

* トランス-2-メチルシクロヘキシルアミン残基の含量 (FT-IR法により測定)

表 1 及び表 2 の結果から、次の事項が明らかである。

【0159】

(1) 本発明のアミド系化合物自体の熱安定性に関して、トランス-2-アルキルシクロ

ヘキシルアミン残基の含量 (Ctrans) が増大するにつれて、融点及び 10% 重量減少温度が高くなり、70% 以上、特に 75% ~ 100% である場合 (実施例 1 ~ 16) は、Ctrans が 70% 未満の場合 (比較例 1 ~ 16) に比べて、融点及び 10% 重量減少温度が高くなっており、核剤自体の熱安定性がかなり向上している点で顕著な改善がみられる。

【0160】

なかでも、Ctrans が 75% ~ 100%、特に 90 ~ 100% であるアミド系化合物を使用した場合 (実施例 1 ~ 3、実施例 5 ~ 7、実施例 9 ~ 11 及び実施例 13 ~ 15)、Ctrans が 70% 未満の場合 (比較例 1 ~ 16) に比べて、融点及び 10% 重量減少温度が約 4 ~ 5℃ 以上も高く、熱安定性が顕著に向上している。

【0161】

アミド系造核剤の熱分解により核剤性能が低下するため、10% 重量減少温度における約 4 ~ 5℃ の温度差は、ポリオレフィン樹脂の加工時、特に樹脂組成物及び成形体を大量生産する場合に大きな影響を与える。

【0162】

(2) また、成形体の物性も、Ctrans の増大に伴って向上している。より詳しくは、Ctrans が増大するにつれて成形体の物性が向上し、Ctrans が 68.2% 又は 69% の場合 (比較例 1、6、9 及び 14) でも、既に優れた透明性 (ヘイズ値)、結晶化温度 (Tc) 及び曲げ弾性率を有しているが、Ctrans が 70% ~ 100% である場合 (実施例 1 ~ 16) は、その優れた透明性、結晶化温度及び曲げ弾性率が実質上維持され又は向上している。

【0163】

なかでも、Ctrans が 75% ~ 100%、特に 90 ~ 100% であるアミド系化合物を使用した場合 (実施例 1 ~ 3、実施例 5 ~ 7、実施例 9 ~ 11 及び実施例 13 ~ 15)、Ctrans が 70% 未満の場合 (比較例 1 ~ 16) に比べて、曲げ弾性率及び結晶化温度が一段と向上している。

【0164】

(3) 従って、アミド系化合物の熱安定性及び成形体の各種物性を総合して考慮すると、Ctrans を 70% 以上、特に 75% 以上とするのが好ましく、90 ~ 100% とすることがより好ましい。

【0165】

(4) なお、表 1 及び表 2 から、原料 2-アルキルシクロヘキシルアミンのトランス体-シス体混合物中のトランス体含量と、該原料を用いて得られたアミド系化合物中のトランス-2-アルキルシクロヘキシルアミン残基の含量 (Ctrans) とは、実質上同一であることも明らかである。

【産業上の利用可能性】

【0166】

本発明に従い、一般式 (1) で表されるアミド系化合物を構成する 2-アルキルシクロヘキシルアミン残基の立体異性構造におけるトランス体含量が 70 ~ 100% の範囲にある場合、当該アミド系化合物自体の熱安定性に優れ、また、かかるアミド系化合物又はこれを含むポリオレフィン用造核剤をポリオレフィン樹脂に配合することにより、透明性、結晶性及び剛性に優れたポリオレフィン樹脂組成物及び成形体を得ることができる。

【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 透明性、結晶性（耐熱性）及び剛性に優れたポリオレフィン樹脂組成物及び成形体を与えることができ、且つ、それ自体の熱安定性に優れたポリオレフィン樹脂用造核剤として有用な化合物を提供する。

【解決手段】 一般式（1）

【化1】



〔式中、 a は2～6の整数を表す。 R^1 は炭素数2～30の飽和若しくは不飽和脂肪族ポリカルボン酸残基であり、該残基は2～6個の基である。2～6個の R^2 基は、同一又は相異なって、トランス-2-アルキルシクロヘキシルアミン残基又はシス-2-アルキルシクロヘキシルアミン残基を表す。〕で表されるアミド系化合物の1種単独又は2種以上の混合物であって、トランス-2-アルキルシクロヘキシルアミン残基の含量が70～100%である化合物又は混合物をポリオレフィン樹脂に配合する。

特願 2 0 0 3 - 3 5 8 0 0 4

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [0 0 0 1 9 1 2 5 0]

1. 変更年月日	1 9 9 0 年 8 月 7 日
[変更理由]	新規登録
住 所	京都府京都市伏見区葭島矢倉町 1 3 番地
氏 名	新日本理化株式会社

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ **BLACK BORDERS**
- ☐ **IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**
- ☐ **FADED TEXT OR DRAWING**
- ☐ **BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**
- ☐ **SKEWED/SLANTED IMAGES**
- ☐ **COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**
- ☐ **GRAY SCALE DOCUMENTS**
- ☐ **LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**
- ☐ **REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**
- ☐ **OTHER:** _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.